

ORSAY
Série A,
n° d'ordre
660

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES APPLIQUEES

PAR

Charles ENGELMANN

PREMIERE THESE

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'ANALYSE PAR ACTIVATION
AU MOYEN DES PARTICULES CHARGEES ET DES PHOTONS GAMMA

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 24 juin 1970 devant la Commission d'Examen

MM. MICHEL

Président

LEFORT
TOUSSET
CABANE

Examineurs

ORSAY
Série A,
n^o d'ordre
660

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES APPLIQUEES

PAR

Charles ENGELMANN

PREMIERE THESE

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'ANALYSE PAR ACTIVATION
AU MOYEN DES PARTICULES CHARGEES ET DES PHOTONS GAMMA

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 24 juin 1970 devant la Commission d'Examen

MM. MICHEL

Président

**LEFORT
TOUSSET
CABANE**

Examineurs

THÈSE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY
UNIVERSITÉ DE PARIS

LE GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCES APPLIQUÉES



$\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$ $\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$



Digitized by the Internet Archive
in 2026

SOMMAIRE

	<u>Pages</u>
A - Introduction	1
B - Analyse par activation par les photons γ	5
I - Généralités	5
a) - Le seuil de la réaction	5
b) - La section efficace	6
II - Principales sources de photons	7
a) - Radioéléments naturels et artificiels	7
b) - Réactions nucléaires	7
c) - Rayonnement de freinage d'électrons	7
d) - L'annihilation en vol des positons	8
III - Etude expérimentale de la production du rayonnement de freinage au moyen d'un accélérateur linéaire d'électrons	8
a) - Aspect théorique du problème	8
b) - Théorie du rayonnement de freinage	11
c) - Détermination expérimentale des caracté- ristiques d'activation du faisceau de photons γ .	13
1. Généralités	13
2. Influence de l'épaisseur de la cible et de sa nature sur les activités induites	14
a) - Résultats des expériences à 35 MeV avec des cibles de Al, Cu et Pt d'épaisseurs variables	14
b) - Epaisseur optimale du platine en fonction de l'énergie des électrons	16
c) - Conséquences pratiques	17

3. Détermination des gradients d'activation	
longitudinal et transversal	17
α) - Voisinage immédiat de la cible	
($2 \text{ cm} \leq d \leq 10 \text{ cm}$)	17
β) - Cas des grandes distances	
($5 \text{ cm} \leq d \leq 60 \text{ cm}$)	18
γ) - Répartition spatiale du faisceau	
de photons	19
4. Gradient longitudinal et transversal dans une	
cartouche d'irradiation	
α) - Gradient longitudinal	20
β) - Gradient transversal	22
5. Remarques	23
IV - Conception et réalisation des équipements pour le	
conditionnement et l'irradiation des échantillons	24
a) - Températures atteintes dans le faisceau	26
b) - Conditionnement des échantillons pendant	
l'irradiation	27
c) - Montage d'irradiation	28
V - Courbes d'activation	29
VI - Application à l'étude des possibilités offertes par	
les photons en vue de déterminer de très faibles	
quantités d'éléments	31
a) - Eléments légers C, N, O et F	31
1. Importance relative des réactions nucléaires	
compétitives	33
2. Sensibilité de détection en fonction de l'énergie	
du faisceau d'électrons	35
b) - Autres éléments	37
c) - Comparaison de nos résultats avec ceux d'autres	
auteurs	40

C - Analyse par activation au moyen de particules chargées 46

I - Généralités

- a) - Parcours des particules chargées dans la matière 46
- b) - Seuil des réactions nucléaires 49
- c) - Hauteur de la barrière coulombienne 49
- d) - Sources de particules chargées 50

II - Méthodes d'étalonnage 51

- a) - Méthode absolue 52
- b) - Méthode de l'étalon interne 54
- c) - Méthode de la section efficace moyenne 55
- d) - Méthode de l'épaisseur équivalente 58
- e) - Méthode comparative 62

III - Courbes d'activation intégrée 63

- a) - Généralités 63
- b) - Courbes d'activation intégrée de B, C, N
O et F par les protons 66
- c) - Courbes d'activation intégrée de B, C, N
et O par les deutons 68
- d) - Courbes d'activation intégrée de Be, B, C
N, O et F par les ^3He 70
- e) - Courbes d'activation intégrée de Be, B, C
N, O et F par les particules α 72
- f) - Autres courbes d'activation possibles,
relatives à des réactions nucléaires produi-
sant les mêmes isotopes que précédemment
par irradiation avec des p, d, ^3He et α . 74

IV - Possibilités offertes par l'activation avec les p, d,
 ^3He et α , pour déterminer de très faibles teneurs
de Be, B, C, N, O et F 76

- a) - Sensibilités de détection 76
- b) - Importance relative des principales réactions
nucléaires compétitives 78
- c) - Comparaison de nos résultats avec ceux
publiés par d'autres auteurs 78

D - Comparaison entre les possibilités offertes respectivement par les activations avec les p, d, ^3He , α et les photons γ pour déterminer des traces de Be, B, C, N, O et F.	97
I - Choix du moyen d'activation en fonction de la nature de l'élément à doser	98
a) - Béryllium	99
b) - Bore	99
c) - Carbone	99
d) - Azote	99
e) - Oxygène	99
f) - Fluor	100
g) - Remarques	100
h) - Tableau récapitulatif	101
E - Méthodes de séparation chimique des isotopes actifs obtenus par irradiation de Be, B, C, N, O et F avec les particules chargées et les photons γ .	
I - Séparation simultanée du carbone 11 et de l'azote 13.	106
II - Séparation de l'oxygène 15 par fusion réductrice	107
III - Séparation du fluor 18	109
IV - Remarques	109
F - Exemples d'application	111
I - Généralités	111
II - Dosage de l'oxygène dans le sodium par activation avec les protons	113
a) - Préparation des échantillons	113
b) - Intensité de faisceau maximale admissible	117
c) - Résultats obtenus et possibilités de la méthode	117
III - Le problème du décapage après irradiation	119

IV - Détermination de quelques éléments légers dans le silicium	122
a) - Dosage non destructif de l'oxygène	122
b) - Remarque à propos du dosage de traces d'oxygène dans le silicium par activation avec les particules α	125
c) - Dosage du carbone et du fluor par activation avec les photons γ	126
V - Autres exemples	127
a) - Dosage du carbone, de l'azote et de l'oxygène dans du fer et du niobium de très grande pureté	127
b) - Remarque à propos du dosage non destructif de l'oxygène par activation avec les ^3He	130
c) - Autres résultats	130
G - Conclusions	132
Références	134

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'ANALYSE PAR ACTIVATION AU MOYEN DES PARTICULES CHARGEES ET DES PHOTONS GAMMA

A - INTRODUCTION

L'analyse par activation est une application directe de la découverte, de la radioactivité artificielle, faite en 1933 par Irène et Frédéric JOLIOT CURIE [1]. Ils montrèrent en effet, que le bore, le magnésium et l'aluminium devenaient radioactifs après avoir été bombardés par les rayons alpha du polonium. Consécutivement à ces travaux, G. de HEVESY, qui depuis de nombreuses années utilisait déjà la technique des indicateurs radioactifs [2], exposa du dysprosium à une source de neutrons, radium béryllium. L'énorme activité induite sur cet élément, lui donna l'idée d'employer ce procédé, pour doser le dysprosium dans l'yttrium. Ce fut la première analyse par activation [3]. Peu de temps après, SEABORG et LIWINGWOOD, déterminèrent des teneurs de gallium de quelques 10^{-6} dans le fer, par activation par les deutons, du cyclotron de BERKELEY [4]. De nombreux essais similaires suivirent.

Le développement des réacteurs nucléaires et les possibilités de flux de neutrons qu'ils offraient, faisaient abandonner progressivement l'activation par les particules chargées. Les impuretés auxquelles on s'intéressait étaient en effet le plus souvent des éléments s'activant fortement aux neutrons thermiques. Mais à partir de 1953, la nécessité de pouvoir déterminer des traces infimes d'éléments légers dans des métaux ultra purs, imposa l'utilisation des particules chargées d'abord, des photons γ ensuite. En effet, à cette époque, l'absence d'une méthode de dosage suffisamment sensible et sûre, amena Ph. ALBERT, G. CHAUDRON et P. SUE [5] à employer les deutons fournis par le cyclotron du Collège de France, pour doser des traces de carbone dans le fer pur. P. SUE, étudia ensuite les possibilités offertes par les deutons pour déterminer plusieurs éléments légers dont B, C, N et O [6].

En 1954, BASILE, HURE, LEVEQUE et SCHUHL, proposèrent l'activation par les photons γ de freinage pour doser C, N et O [7] . Quelques années après, aux Etats-Unis [8] , puis en France [9] , on utilisa cette technique pour contrôler systématiquement la purification du béryllium. En 1958, R.A. GILL dosa le bore dans le silicium par activation par les protons [10] . T. NOZAKI, S. TANAKA, M. FURAKAWA et K. SAITO, utilisèrent des particules α pour déterminer l'oxygène dans ce même matériau semi conducteur en 1961 [11] . Dès 1959, S.S. MARKOWITZ et J.M. HALL signalèrent les possibilités des ^3He pour doser l'oxygène [12] . Cette particule chargée a ensuite fait l'objet de nombreux travaux. En 1960, B.A. THOMPSON utilisa les protons pour mesurer l'épaisseur de films d'oxydes en activant l'oxygène 18 [13] .

Depuis, le nombre des laboratoires étudiant les méthodes d'activation par les particules chargées et les photons γ n'a cessé d'augmenter. Leurs domaines d'applications ne se limitent d'ailleurs plus aux seuls éléments légers, où ils sont irremplaçables, mais aussi à d'autres éléments pour lesquels l'activation par les neutrons thermiques ou rapides ne permet pas d'atteindre les sensibilités nécessaires. D'autre part, pour certains cas, l'activation par les particules chargées ou les photons γ , s'avère plus intéressante, parce que l'activité induite dans le matériau constituant l'échantillon est beaucoup moins importante permettant à la limite, des dosages non destructifs, impossibles par irradiation par les neutrons. Bien que très rares, on connaît aussi des exemples où l'activation par les neutrons ne peut être utilisée à cause, de l'existence de réactions nucléaires compétitives, ou de la formation d'isotope qui par filiation radioactive donne un nucléide qui, activé à son tour, amène un isotope actif identique à celui, sur lequel est basé le dosage. Citons par exemple l'interférence du cuivre, dans les dosages de nickel et de zinc [14] .

Rappelons le principe général de l'analyse par activation [15] .

1 - L'échantillon à analyser est irradié par un flux de particules. Les éléments qu'il contient, subissent des réactions nucléaires. Il en résulte la création d'isotopes radioactifs, caractéristiques des éléments bombardés. En identifiant ces isotopes on peut donc connaître la nature des impuretés présentes dans l'échantillon. D'autre part, en mesurant l'intensité du rayonnement émis leur teneur.

2 - Ces mesures peuvent se faire directement sur l'échantillon à la fin de l'irradiation - l'analyse sera alors non destructive - ou après séparation chimique de l'isotope spécifiquement recherché. Ce qui, est nécessaire le plus souvent, compte tenu des activités des autres isotopes simultanément produits.

3 - A l'exception des analyses de couches minces, les échantillons subissent immédiatement après l'irradiation un prétraitement, dont l'objet est d'éliminer la pellicule superficielle constituant une couche de contamination. Après cette opération préliminaire, la mesure ne portera plus que sur les atomes activés, contenus dans l'échantillon. La formation d'une nouvelle pellicule n'affectera plus le résultat, puisque les éléments qui la constituent n'ont subi aucune activation. On s'affranchit par conséquent de toutes les causes classiques d'erreurs rencontrées en analyse des traces ; pureté des réactifs, contamination lors de la manipulation, dont l'ensemble se traduit par la notion de "blanc".

L'analyse par activation se caractérise ainsi essentiellement par les deux points suivants :

a) - Très grande sensibilité de détection, meilleure que 10^{-9} dans de nombreux cas.

b) - Possibilité d'éliminer les incertitudes analytiques imputables à l'environnement des échantillons.

Cette dernière propriété est spécifique de la méthode et n'existe, actuellement du moins, nulle part ailleurs. D'où l'intérêt sans cesse croissant manifesté pour ces méthodes, dans le domaine des

analyses de traces ultimes.

L'étude expérimentale décrite ci-après, concerne surtout cette partie de l'immense domaine des méthodes nucléaires d'analyse, limitée d'ailleurs aux particules chargées et aux photons γ . De plus, nous nous sommes intéressés surtout à la détermination des éléments légers. Ce qui n'empêche, que nous avons considéré aussi, le dosage de quelques autres éléments par activation par les photons.

En effet, outre les analyses globales considérées seules ici, les particules chargées sont aussi utilisées pour doser certains éléments légers dans les couches minces avec des sensibilités atteignant 10^{-10} à 10^{-12} g [16].

B - ANALYSE PAR ACTIVATION PAR LES PHOTONS γ .

I - Généralités

Les éléments à doser sont déterminés par la mesure du nombre d'isotopes actifs produits au moyen de réactions (γ , n), dont les principales caractéristiques intéressant directement le problème analytique sont :

a) - Le seuil de la réaction
.....

C'est l'énergie minimale nécessaire pour qu'elle puisse se produire.

En désignant par :

M la masse du noyau initial

M' la masse du noyau résiduel

m la masse du neutron

v la vitesse du neutron qui est aussi égale à celle
du noyau de recul à l'énergie seuil E_s

c la vitesse de la lumière

le bilan énergétique de la réaction (γ , n) s'écrit :

$$Q = Mc^2 - (M' + m) c^2$$

Dans le système du laboratoire, les équations non relativistes de conservation de l'énergie et des quantités de mouvement sont respectivement pour l'énergie seuil E_s :

$$E_s = \frac{1}{2} M' v^2 + \frac{1}{2} m v^2 - Q$$

$$\frac{E_s}{c} = M' v + m v$$

soit l'équation

$$E_s = -Q + \frac{1}{2(m + M')} c^2 E_s^2$$

qui montre, qu'en première approximation on a

$$E_s \approx -Q$$

la solution exacte étant

$$E_s = (m + M') c^2 \left[1 - \sqrt{1 + \frac{2 Q}{(m + M') c^2}} \right]$$

b) - La section efficace
.....

La fonction d'excitation des réactions (γ , n) se caractérise par une zone d'énergie où la section efficace présente un maximum (cf. figure 1). Située aux environs de 20 MeV pour les éléments légers, cette "résonance géante" se déplace vers les basses énergies au fur et à mesure que les noyaux deviennent plus lourds. La section efficace correspondant au maximum augmente elle aussi avec le nombre de masse A.

On peut trouver dans la littérature des formules permettant de calculer l'énergie E_M au maximum, ainsi que la section efficace intégrée $\int \sigma dE$.

G. J. LUTZ [17], utilisant les relations suivantes

$$E_M = 80 A^{-1/3} \text{ MeV}$$

$$\int \sigma dE = 0,06 \frac{NZ}{A} \text{ MeV barn}$$

A nombre de masse

N nombre de neutrons du noyau

Z numéro atomique

a calculé les activités induites sur un grand nombre d'éléments supposés irradiés dans un flux de photons γ de freinage. Les valeurs qu'il détermine ainsi sont en bon accord avec les résultats expérimentaux.

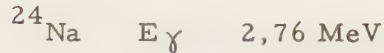
Quant à la largeur à mi-hauteur Γ , sa variation en fonction du noyau est moins simple. Voisine de 5 MeV pour de nombreux nucléides, elle atteint 8 MeV pour certains [17].

II - Principales sources de photons γ .

Elles sont les suivantes :

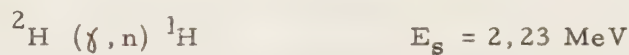
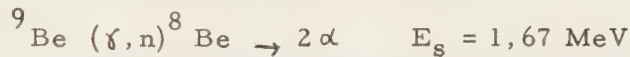
a) - Radioéléments naturels et artificiels

Les énergies ne dépassent jamais 3 MeV. On utilise par exemple



pour déterminer le deutérium par comptage des photoneutrons [18].

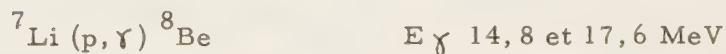
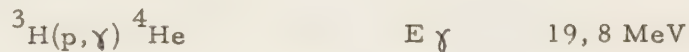
De la même façon, on pourrait doser le béryllium. Pour ces deux éléments les seuils des réactions (γ, n) sont en effet exceptionnellement bas.



On peut d'autre part, doser certains éléments de $Z > 30$, au moyen des isomères nucléaires formés par réaction (γ, γ'), par activation par les photons γ issus de radioéléments. Par exemple, Se, Br, Sr, Ag, Cd et In sont déterminables en irradiant l'échantillon dans les rayons γ émis par une source de ^{60}Co de plusieurs dizaines de kCi [19].

b) - Réactions nucléaires

Les plus connues sont :



Les flux que l'on peut obtenir sont toujours relativement très faibles.

c) - Rayonnement de freinage d'électrons

Il résulte du freinage d'électrons, préalablement accélérés dans des Van de Graaff, bêtatrons, synchrotrons et accélérateurs linéaires, qui bombardent une cible. Le spectre des photons est continu (Cf. figure 2). L'énergie maximale étant égale à l'énergie cinétique des

électrons. Les flux peuvent être très intenses. Les plus importants dans les hautes énergies ($E > 20$ MeV) sont actuellement obtenus au moyen des accélérateurs linéaires qui peuvent fournir des faisceaux d'électrons de plusieurs centaines de μA . Les Van de Graaff aussi, peuvent donner de gros faisceaux, mais leur énergie est limitée à quelques MeV.

d) - L'annihilation en vol des positons
.....

Le spectre est pratiquement monoénergétique. Néanmoins, les flux sont toujours très faibles, plus de 10^{-4} fois inférieurs à ceux du rayonnement de freinage des électrons primaires.

III - Etude expérimentale de la production du rayonnement de freinage au moyen d'un accélérateur linéaire d'électrons

a) - Aspect théorique du problème
.....

Examinons sommairement les phénomènes qui interviennent lors du passage des électrons dans la matière. Ils subissent un freinage, conséquence de deux processus.

D'une part, l'excitation et l'ionisation des atomes. La perte d'énergie en résultant par unité de longueur de parcours est donnée par la relation de Bethe - Bloch [20]

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{Coll}} = \frac{2 \pi e^4 N Z}{m_0 v^2} \left[\text{Log}_e \frac{E(E + m_0 c^2)^2}{2 I^2 m_0 c^2} \beta^2 + (1 - \beta^2) - (2 \sqrt{1 - \beta^2} - 1 + \beta^2) \text{Log}_e 2 + \frac{1}{8} (1 - \sqrt{1 - \beta^2})^2 \right] \text{MeV cm}^{-1} \quad (1)$$

E Energie cinétique de l'électron

N Nombre d'atomes ralentisseurs par cm^3

Z Numéro atomique

e Charge de l'électron

m_0 Masse au repos de l'électron

v Vitesse de l'électron

c Vitesse de la lumière

I Potentiel moyen d'ionisation

$\beta = \frac{v}{c}$

D'autre part, le rayonnement de freinage,

L'électron en passant dans le champ coulombien d'un noyau subit une accélération. Il en résulte l'émission d'un photon γ . Le spectre des photons est continu. L'énergie maximale est égale à l'énergie cinétique de l'électron

$$E_c = E_o - m_o c^2$$

Les électrons atomiques interviennent en créant un effet d'écran, d'autant plus important que le paramètre d'impact électron noyau est grand.

La perte moyenne d'énergie par unité de longueur de parcours imputable à ce phénomène s'exprime au moyen de la relation [20] :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{rad}} = N r_o^2 \frac{Z^2}{137} (E + m_o c^2) \left[4 \text{Log}_e \frac{2 (E + m_o c^2)}{m_o c^2} - \frac{4}{3} \right]$$

$$\text{Mev cm}^{-1} \quad (2)$$

$$r_o \text{ rayon classique de l'électron} = \frac{e^2}{m_o c^2}$$

Les relations (1) et (2) montrent que dans le domaine d'énergie qui nous intéresse soit celui des électrons subrelativistes

- la perte par collision inélastique est sensiblement proportionnelle au Z du matériau cible et varie avec le logarithme de l'énergie.
- tandis que celle par rayonnement est proportionnelle à Z^2 et à l'énergie.
- le rapport entre les amplitudes des deux processus de ralentissement est approximativement,

$$\frac{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{rad}}}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{coll}}} \approx \frac{(E + m_o c^2) Z}{1600 m_o c^2}$$

ils ont donc des effets égaux pour une énergie critique

$$E_{cr} \approx \frac{800}{Z} \text{ Mev}$$

au delà, la perte par rayonnement l'emporte, en dessous ce sont les pertes par collision qui sont prédominantes.

Les calculs exacts donnent $E_{cr} = 6,9 \text{ MeV}$ pour le plomb et $E_{cr} = 47 \text{ MeV}$ pour l'aluminium [20] .

Quant au parcours des électrons d'énergie initiale E , il est défini par l'équation

$$R = \int_E^0 \frac{dE}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{coll} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{rad}}$$

Pour être complet, il faut ajouter aux phénomènes précédents la diffusion multiple des électrons dans la matière.

Si l'on suppose que le nombre de collisions n est grand, la valeur moyenne de l'angle de diffusion $\bar{\Theta}$ est donnée par l'expression [20]:

$$\bar{\Theta} = X_c \sqrt{B} \frac{\pi}{2} \left[1 + \frac{0,982}{B} - \frac{0,117}{B^2} + \dots \right]$$

B dépend de n . Pour $\text{Log}_{10} n = 3$ $B = 8,93$ Si $\text{Log}_{10} n = 9$

$B = 23,71$

$$X_c = \frac{0,78 Z}{\left[\frac{E + m_0 c^2}{m_0 c^2} - \frac{m_0 c^2}{E + m_0 c^2} \right]} \sqrt{\frac{\rho}{A}} \text{ radians}$$

ρ Masse superficielle en g cm^{-2} de l'écran traversé

Pour les grandes énergies, $E \gg m_0 c^2$

$$X_c = 0,4 \frac{Z}{E} \sqrt{\frac{\rho}{A}}$$

D'autre part, la distribution angulaire des électrons diffusés est gaussienne. La probabilité pour qu'un électron traversant un écran de masse superficielle ρ , dont le matériau constituant a un numéro atomique Z , un nombre de masse A , soit dévié à la sortie d'un angle Θ est

$$p(\Theta) = \frac{1}{\Theta \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{\Theta^2}{2\Theta^2}\right)$$

b) - Théorie du rayonnement de freinage
.....

La théorie du rayonnement de freinage est complexe. On peut trouver dans la littérature de nombreuses méthodes de calculs pour des cibles minces et épaisses, donnant le spectre en énergie et la distribution angulaire des photons [21]. Elles sont toutes basées sur les théories de BETHE et HEITLER.

Si les électrons sont relativistes, la cible très mince, de sorte que l'on puisse négliger la diffusion multiple, on a [22] :

$$d\sigma(E_\gamma) = \frac{4Z^2 r_0^2}{137} \frac{dE_\gamma}{E} \left[1 + \left(\frac{E}{E_0}\right)^2 - \frac{2}{3} \left(\frac{E}{E_0}\right) \right] \left[\text{Log}_e \left(\frac{2E_0 E}{E_\gamma} \right) - \frac{1}{2} \right] \quad (1).$$

$d\sigma(E_\gamma)$ section efficace différentielle pour obtenir un photon d'énergie comprise entre E_γ et $E_\gamma + dE_\gamma$

Z numéro atomique de la cible

r_0 rayon classique de l'électron

E_0 énergie de l'électron avant freinage

E énergie de l'électron après freinage

L'angle moyen d'émission du photon est

$$\Theta \approx \frac{m_0 c^2}{E_0} \quad (2)$$

En fait, dans la relation (1), on néglige l'effet d'écran des électrons atomiques. Si l'on admet que cet effet est total la relation (1) devient :

$$d\sigma(E, \gamma) = \frac{4 Z^2 r_0^2}{137} \frac{dE \gamma}{E \gamma} \left[1 + \left(\frac{E}{E_0} \right)^2 - \frac{2}{3} \left(\frac{E}{E_0} \right) \right] \text{Log}_e \left(183 Z^{-1/3} + \frac{1}{9} \frac{E}{E_0} \right) \quad (3)$$

dont l'intégration pour toutes les énergies de photons, donne la section efficace totale de production de rayonnement de freinage.

$$\sigma = \frac{4 Z^2 r_0^2}{137} \left[\text{Log}_e 183 Z^{-1/3} + \frac{1}{18} \right] \quad (4)$$

Le cas réel est évidemment intermédiaire entre les extrêmes considérés ci-dessus. Pour mesurer le degré de l'effet d'écran on utilise souvent la quantité

$$\gamma = \frac{100 E}{E_0 E Z^{1/3}} \quad (5)$$

L'effet d'écran total correspond aux $\gamma \ll 1$. Pour les cas intermédiaires, on peut introduire un terme correctif dans la relation (1) de sorte qu'elle devient :

$$d\sigma(E, \gamma) = \frac{4 Z^2 r_0^2}{137} \frac{dE \gamma}{E \gamma} \left[1 + \left(\frac{E}{E_0} \right)^2 - \frac{2}{3} \left(\frac{E}{E_0} \right) \right] \left[\text{Log}_e \frac{2 E_0 E}{E \gamma} - \frac{1}{2} - C(\gamma) \right] \quad (6)$$

Le coefficient $C(\gamma)$, décroît quand γ augmente. Egal à 0,2 pour $\gamma = 2$, il est de 0,05 pour $\gamma = 6$ [22.]

Pour être plus exact, il faut enfin tenir compte du rayonnement de freinage émis dans le champ des électrons atomiques. Si l'on suppose un effet d'écran total, pour des électrons subrelativistes, la section efficace différentielle est :

$$d\sigma_e(E\gamma) = \frac{4 Z r_0^2}{137} \frac{dE_\gamma}{E_\gamma} \left[1 + \left(\frac{E}{E_0} \right)^2 - \frac{2}{3} \left(\frac{E}{E_0} \right) \right] \text{Log}_e \frac{530}{Z^{2/3}} \quad (7)$$

dont l'intégration pour toutes les énergies donne

$$\sigma_e = \frac{4 Z r_0^2}{137} \text{Log}_e \frac{530}{Z^{2/3}} \quad (8)$$

Finalement, on voit que la section efficace totale se compose de deux termes :

- l'un, imputable aux noyaux et proportionnel à Z^2
- l'autre, dû aux électrons et proportionnel à Z

$$\sigma_{\text{totale}} = Z (Z + n) \frac{\sigma}{Z^2} \quad (9)$$

$$n = \text{Log}_e \frac{530}{Z^{2/3}} \times \frac{1}{\text{Log}_e \frac{183}{Z^{1/3}} + \frac{1}{18}}$$

n varie de 1,04 à 0,88 quand Z passe de 12 à 82 [22]

c) - Détermination expérimentale des caractéristiques d'activation
du faisceau de photons γ .

1 - Généralités

L'accélérateur linéaire utilisé a 3 sections. Ses principales performances sont [23] :

Energie de zéro	54 MeV
Energie pour un courant crête de 85 mA	46 MeV
Pente de la droite de charge	10 mA / MeV
Largeur des impulsions	0,01 à 2 μ S
Fréquences de répétition	500 Hz et sous multiples jusqu'à 31,25 Hz

Le diamètre du faisceau d'électrons à la sortie de l'accélérateur est de 6 à 8 mm. L'intensité du faisceau en fin de la troisième section est mesurée au moyen d'un moniteur de courant. C'est une bobine montée sur un tore de ferrite qui constitue un transformateur d'intensité dont le primaire est le faisceau d'électrons. Ce dispositif permet de mesurer l'intensité crête en valeur absolue et sa réponse est indépendante

de l'énergie des électrons. On peut aussi mesurer l'intensité du faisceau sur la cible. Néanmoins, il nous semble qu'il est préférable de se référer aux valeurs données par la ferrite, éliminant du coup l'incertitude, due à l'émission secondaire de la cible et à l'absorption totale du faisceau d'électrons.

D'autre part, dans toutes les expériences sur le faisceau de photons γ de freinage, nous avons eu recours à deux sortes de moniteurs d'activation, le carbone et l'argent, dont les seuils d'activation (γ, n) sont assez différents (18,7 MeV pour le carbone et 9,4 MeV pour l'argent). Par ce moyen, il est donc possible d'obtenir des informations concernant l'activation (γ, n) des éléments ayant des seuils compris entre 10 et 20 MeV environ.

2 - Influence de l'épaisseur de la cible et de sa nature, sur les activités induites.

La disposition relative, sortie de l'accélérateur - cible - moniteur est indiquée figure 3. La distance entre la face de sortie de la cible et les moniteurs reste constante quelle que soit l'épaisseur des cibles.

Pour ces mesures, nous avons utilisé les deux types de moniteurs suivants :

- des cylindres $\varnothing = 2\text{ mm}$, $h = 4\text{ mm}$ dont l'activation est représentative du faisceau axial.

- des disques très minces de $\varnothing 20\text{ mm}$, qui interceptent une grande partie du flux de photons émis en avant.

Dans les deux cas, le diamètre des moniteurs est perpendiculaire à l'axe du faisceau pendant l'irradiation.

α) - Résultats des expériences à 35 MeV avec des cibles de Al, Cu et Pt d'épaisseurs variables.

Tous les moniteurs furent irradiés pendant 1 minute dans un faisceau équivalent à $50\mu\text{A}$ moyen sur la cible de platine d'épaisseur 6 mm. Cette série d'expériences a en effet été effectuée avant que nous

ayons pris comme référence la mesure ferrite. Comme il s'agit de comparer entre elles les efficacités des cibles de Al, Cu et Pt, le fait de prendre comme repère, l'indication d'intensité sur cette cible de platine, n'altère en rien la validité des conclusions que l'on peut tirer des résultats. D'autant plus, que lors de chaque série d'essais, le réglage de l'intensité du faisceau se faisait d'après les indications recueillies sur cette cible, montée avec cinq autres sur un changeur télécommandé, déjà décrit par ailleurs [24], prévu pour cette étude. Le centrage du faisceau d'électrons était contrôlé au moyen d'un quartz, qui devenait fluorescent sous l'impact des particules. Il occupait lui aussi une place sur le changeur de cibles. L'observation de sa luminosité se faisait au moyen d'un circuit intérieur de télévision qui permettait en même temps de positionner les diverses cibles dans l'axe du faisceau par l'intermédiaire d'un vérin hydraulique.

Les résultats obtenus, exprimés en désintégrations par minute pour le carbone, en nombre de β^+ émis par minute pour l'argent, à la fin de l'irradiation, par μg , en fonction de l'épaisseur des cibles en g cm^{-2} , sont représentés sur les courbes des figures 4 à 7.

De l'ensemble de ces résultats on déduit que :

- il existe une épaisseur optimale pour laquelle l'activation est maximale, au delà, elle décroît d'une façon sensiblement exponentielle, ce qui est une conséquence logique de l'absorption des photons par le matériau de la cible.

- l'épaisseur optimale semble indépendante du Z, elle est de $4 \pm 0,5 \text{ g cm}^{-2}$ pour Al, Cu et Pt.

Si l'on représente en fonction de Z, les activités induites dans les moniteurs, supposés irradiés derrière des cibles d'épaisseur optimale, on obtient les courbes de la figure 8. Elles montrent, que dans aucun cas, les flux de photons, du moins, dans la zone d'énergie où se trouvent les résonances géantes ne varient proportionnellement à Z^2 , comme on aurait pu le prévoir d'après les relations théoriques.

Les résultats de ces expériences montrent aussi, qu'en moyenne, les rapports d'activation entre le faisceau axial et celui intercepté par les disques $\varnothing$ 20 mm sont de

$$\begin{array}{l} 1,5 \pm 0,2 \text{ pour Ag} \\ \text{et } 2,5 \pm 0,5 \text{ pour C} \end{array}$$

Compte tenu de ce que les seuils sur C et Ag diffèrent de près de 10 MeV, on voit d'après ces valeurs, que les photons de la partie supérieure du spectre de freinage à 35 MeV, sont très directifs vers l'avant, dans le voisinage immédiat de la cible. On conçoit que l'écart entre ces deux chiffres est d'autant plus important que l'énergie maximale est voisine du seuil de la réaction sur le carbone.

β) - Epaisseur optimale du platine en fonction de l'énergie des électrons.
.....

Les moniteurs furent irradiés pendant 1 minute dans un faisceau d'intensité moyenne $100 \mu\text{A}$, mesurée par la ferrite, d'énergie respectivement 25, 30 et 40 MeV. A 45 MeV, l'intensité du faisceau était très inférieure, de l'ordre de $10 \mu\text{A}$ seulement. Les valeurs expérimentales relatives à cette énergie ont été normalisées par rapport à $100 \mu\text{A}$. L'incertitude dont a été entachée la mesure de l'intensité de $10 \mu\text{A}$, explique, que les courbes à 45 MeV sont en dessous de celles à 40 MeV. Ce décalage concerne naturellement les valeurs d'activités induites et non la position de la courbe suivant l'axe des épaisseurs.

Les résultats obtenus sont représentés par les courbes des figures 9 à 12. On en déduit les valeurs suivantes :

E MeV	Epaisseur optimale	Pt en g cm^{-2}
25	$2,5 \pm 0,5$	
30	$3,5 \pm 0,5$	
40	$4,5 \pm 0,5$	
45	$5 \pm 0,5$	

La variation de l'épaisseur optimale de platine, relative à l'activation du carbone et de l'argent, en fonction de l'énergie des électrons est donnée par la courbe de la figure 13. L.H. LANZL et A.O. HANSON avaient déterminé l'épaisseur optimale d'or pour des électrons de 17 MeV, au moyen d'une petite chambre d'ionisation. Ils trouvaient $1,7 \text{ g cm}^{-2}$, le calcul donnait $1,8 \text{ g cm}^{-2}$ [25] .

γ) - Conséquences pratiques
.....

Les valeurs précédentes montrent, que l'épaisseur optimale varie d'une façon non négligeable avec l'énergie des électrons. Il est par conséquent toujours intéressant pour travailler dans des conditions d'activation maximale à chaque énergie, de disposer d'une cible d'épaisseur voisine de la valeur optimale. D'où l'intérêt d'un changeur de cibles télécommandé, qui permet lors d'une séquence d'exploitation de l'accélérateur, de mettre en place très rapidement, sans arrêter la machine, celle donnant le maximum d'activation à l'énergie choisie.

3 - Détermination des gradients d'activation longitudinal et transversal.

Ils ont été déterminés dans le voisinage immédiat de la cible ($2 \text{ cm} \leq d \leq 10 \text{ cm}$) et aux grandes distances ($5 \text{ cm} \leq d \leq 60 \text{ cm}$). Les montages utilisés pour ces expériences sont représentés figures 14 à 17. Les moniteurs ($\varnothing 10 \text{ mm}$) sont fixés à l'extrémité de tiges en aluminium alignées dans différentes directions angulaires ($0 \leq \Theta \leq \frac{\pi}{2}$), sur un plateau solidaire de la cible étudiée. L'ensemble orienté par rapport à l'axe du faisceau d'électrons est irradié pendant 20 minutes. Après, chacun des moniteurs, préalablement repéré, est retiré et mesuré. On s'est limité à deux cibles, d'épaisseurs, $12,9 \text{ g cm}^{-2}$ pour Pt et $13,5 \text{ g cm}^{-2}$ pour Al.

α) - Voisinage immédiat de la cible ($2 \text{ cm} \leq d \leq 10 \text{ cm}$)
.....

Les essais ont été effectués avec un faisceau d'électrons de 35 MeV.

- Gradient longitudinal dans l'axe du faisceau.

On obtient les courbes des figures 18 et 19 respectivement pour l'activation du carbone et de l'argent. d est la distance des moniteurs par rapport à la face de sortie de la cible. $\frac{A_d}{A_2}$ l'activité normalisée, à la distance d , en prenant pour référence celle du moniteur à 2 cm derrière la cible dans l'axe du faisceau.

- Gradient transversal

Les figures 20 et 21 montrent comment il varie avec la nature du moniteur d'une part et la distance d à la cible d'autre part. $\frac{A_\theta}{A_0}$ sont les activités normalisées par rapport à celle du moniteur sur l'axe du faisceau à la distance d .

β) - Cas des grandes distances ($5 \text{ cm} \leq d \leq 60 \text{ cm}$)

On a utilisé des faisceaux d'électrons de 25, 35 et 45 MeV.

- Gradient longitudinal dans l'axe du faisceau

L'activité de référence, est celle du moniteur à 5 cm derrière la cible dans l'axe du faisceau (A_5). Le gradient ne semble pas dépendre de l'énergie des électrons (Cf. figures 22 à 25). Mais, comme précédemment pour les petites distances, il est plus important pour la cible de platine.

- Gradient transversal

Le même principe de normalisation des activités des moniteurs qu'en α), est utilisé.

Les courbes construites à partir des résultats montrent :

pour le moniteur Ag, l'énergie des électrons semble avoir peu d'incidence sur l'ouverture du faisceau de photons (Cf. figures 26, 28 et 31) pour les deux cibles Pt et Al.

par contre, dans le cas de l'activation du carbone le gradient transversal varie légèrement avec l'énergie, surtout pour la cible en Al (Cf. figures 27, 29 et 30).

Enfin, en comparant ces courbes avec celles relatives au voisinage immédiat de la cible, on remarque, que dans tous les cas, le faisceau de photons est le plus directif pour le carbone. On peut l'attribuer comme nous l'avons déjà signalé précédemment à propos des rapports d'activation entre le faisceau axial et celui intercepté par un disque de Ø 20 mm, au fait que le seuil de la réaction (γ, n) sur le moniteur de C est de 10 MeV supérieur à celui sur l'argent. Ces résultats montrent donc bien, que, conformément à la théorie, les photons sont d'autant plus directifs vers l'avant que leur énergie est voisine de $E_{\max}$.

§) - Répartition spatiale du faisceau de photons
.....

A partir des résultats numériques des expériences précédentes, on peut construire des courbes d'égale activation qui représentent l'intersection par le plan horizontal contenant l'axe du faisceau, des surfaces de révolution sur lesquelles les activités induites respectivement dans les moniteurs de C et Ag restent constantes et égales à une certaine fraction de l'activation maximale, existante, naturellement, immédiatement derrière la cible. Ces courbes donnent donc une bonne idée de la forme du faisceau de photons dans l'espace. Elles sont représentées sur les figures 32, 33, 34 et 35. Les trois premières concernent les grandes distances, pour trois énergies, 25, 35 et 45 MeV, la dernière, le voisinage immédiat de la cible à 35 MeV.

Pour déterminer ces courbes on a pris comme activité de référence celle d'un moniteur de Ø 10 mm, supposé placé directement derrière la cible dans l'axe du faisceau. Elles indiquent, comment se répartissent les zones, où l'activation du carbone et de l'argent est réduite relativement à la référence précédente, dans des rapports de 0,5, 10^{-1} , 10^{-2} , 10^{-3} et 10^{-4} respectivement.

De leurs formes, on peut tirer un certain nombre de remarques qui sont évidemment les mêmes que celles ci-dessus, c'est à dire :

- l'activation du carbone est plus directive que celle de l'argent, principalement à 25 MeV. L'effet diminuant progressivement en passant à 35 puis 45 MeV.

- pour les grandes distances, il semble y avoir peu de différence au point de vue directivité relative entre la cible de platine et celle d'aluminium quelle que soit l'énergie, pour un même moniteur.

- par contre à 35 MeV, dans son voisinage immédiat, la cible de platine s'avère légèrement plus directive que celle en aluminium.

4 - Gradient longitudinal et transversal dans une cartouche d'irradiation.

Pour compléter les résultats obtenus dans les expériences précédentes, nous avons déterminé ces gradients en irradiant des empilements de cylindres ($\varnothing$ 2 mm, h 4 mm) et des ensembles d'anneaux concentriques, conformément aux représentations schématiques des figures 36 et 37.

α) - Gradient longitudinal

On obtient des courbes similaires à celles déjà montrées précédemment à propos du gradient dans le voisinage immédiat de la cible.

Il semblerait donc bien, qu'en première approximation, on puisse représenter la variation de l'activation dans l'axe du faisceau par une relation du type

$$A_d = A_0 \exp (-kd)$$

A_d activation à la distance d

A_0 activation pour d = 0

d distance du moniteur à la face arrière de la cible

k coefficient défini ci-dessous

valable pour des distances d < 10 cm environ. Au delà, les courbes des figures 22 à 25 montrent que l'activation diminue moins vite que le prévoit la formule précédente.

On pourrait ainsi définir une distance moitié $d_{1/2}$ correspondant à une variation d'un facteur 2 de l'activation.

On aurait donc

$$k = \frac{\text{Log}_e 2}{d_{1/2}}$$

de sorte que l'expression ci-dessus peut s'écrire

$$A_d = A_o \exp \left[-\frac{d}{d_{1/2}} \text{Log}_e 2 \right]$$

Par exemple, d'après les courbes des figures 18 et 19, on a :

<u>Cible</u>	<u>Moniteur</u>	<u>d_{1/2} cm</u>
Pt	C	3,8
12,9 g cm ⁻²	Ag	4
Al	C	5,6
13,5 g cm ⁻²	Ag	6,2

pour des moniteurs de Ø 10 mm à 35 MeV,

Dans le cas présent, (Ø moniteur 2 mm), on a trouvé les valeurs suivantes :

- en fonction de l'énergie des électrons avec la cible de Pt 12,9 g cm⁻²

E MeV	d _{1/2} cm	
	C	Ag
22	2,9	
25	3	
30	2,5	
35	2,5	2,6
	3,1	
	3,2	
40		2,6
45	2,5	

- en fonction de l'épaisseur des cibles en Cu et Al à 35 MeV pour le carbone

Cu		Al	
épaisseur en g cm^{-2}	$d_{1/2}$ cm	épaisseur en g cm^{-2}	$d_{1/2}$ cm
4,3	3,6	5,4	3,8
8,7	3,6	10,8	3,7
13	3,5		3,9
17,4	3,5	16,2	4,8
	4	21,6	4,9
21,8	3,3		
26,2	3,7		
30,5	3,5		
34,8	4		
39,2	3,8		

Toutes ces valeurs de $d_{1/2}$ montrent que le gradient longitudinal dans l'axe du faisceau est indépendant de l'énergie conformément à ce que nous avons déjà constaté, et de l'épaisseur des cibles. Rappelons néanmoins, que les cibles utilisées dans le présent travail sont "épaisses". De sorte, que la conclusion ci-dessus pourrait ne pas être vérifiée pour des cibles "minces" dans lesquelles la diffusion multiple des électrons est très faible, voire négligeable.

Mais par contre, comme nous l'avons déjà vu, $d_{1/2}$ dépend de la nature des cibles. Naturellement, on le conçoit facilement, $d_{1/2}$ augmente avec le diamètre du moniteur.

β) - Gradient transversal

A 35 MeV, avec la cible de platine d'épaisseur $12,9 \text{ g cm}^{-2}$, il est légèrement plus important près de la cible qu'à l'autre extrémité de la cartouche et semble indépendant de la nature du moniteur (Cf. figures 38 et 39). On l'a aussi déterminé à 25 MeV avec la même cible (Cf. figure 40) et à 35 MeV avec la cible d'aluminium (Cf. figure 41). Toutes ces courbes, qui représentent les activités spécifiques induites lors d'une irradiation dans les anneaux successifs, normalisées par rapport à celle du cylindre central, en fonction de leur distance à l'axe de la cartouche, se confondent pratiquement pour une même position dans la cartouche.

Il semblerait donc que le gradient transversal est en première approximation non seulement indépendant du moniteur, mais aussi de l'énergie et de la cible.

Par contre, d'après les résultats de la figure 42, relatifs au gradient transversal de l'activation du carbone près de la cible, il varie avec l'épaisseur de la cible à condition qu'elle soit suffisamment mince pour que la diffusion multiple des électrons n'ait pas atteint la zone de saturation. L'épaisseur optimale à 35 MeV est de $4 + 0,5 \text{ g cm}^{-2}$. La condition précédente est donc partiellement satisfaite pour une épaisseur de $2,15 \text{ g cm}^{-2}$. D'où la mise en évidence de l'influence de l'épaisseur sur le gradient transversal.

5 - Remarques

Dans toutes ces mesures d'efficacité de cibles et de gradients, il est impératif que le diamètre du faisceau d'électrons reste constant tout au long des expériences et indépendant de l'énergie. Ce ne fut certainement pas le cas pour nous et nous pensons que certaines dispersions de résultats, relativement importantes, sont dues à cette cause. Nous ne disposons en effet d'aucun moyen précis de contrôle. Quant à la fluorescence du quartz, l'image globale et diffuse qu'elle donne, ne permet que de suivre les évolutions de la tache faisceau en fonction du temps et de corriger le centrage sur la cible. Nous soupçonnons en effet qu'à l'intérieur de l'aire délimitant l'image lumineuse existe un gradient très important, dont l'évolution d'une expérience à l'autre, imputable aux instabilités de l'accélérateur, entraîne des modifications dans la distribution spatiale du faisceau de photons.

Enfin, il faut rappeler, que les courbes présentées ne sont naturellement pas représentatives de tout le rayonnement de freinage produit dans les cibles, mais seulement de la partie du spectre intervenant directement dans l'activation respectivement du carbone et de l'argent.

D'autre part, les courbes des gradients dépendent certainement d'une façon très étroite du diamètre du faisceau d'électrons. Il n'est donc pas exclu, qu'avec un autre accélérateur ayant un faisceau plus

fin, on trouve des résultats différents, surtout en ce qui concerne le voisinage immédiat de la cible.

Dans la littérature, il n'y a que quelques rares résultats expérimentaux sur la distribution angulaire du faisceau de photons de freinage obtenu avec des électrons accélérés d'énergie supérieure à 10 MeV.

L. H. LANZL et A. O. HANSON [25], ont mesuré pour des électrons de 17 MeV la distribution angulaire des photons. Ils montrent qu'elle est pratiquement la même pour une cible en béryllium ($491,3 \text{ mg cm}^{-2}$) et en or ($37,28 \text{ mg cm}^{-2}$) en utilisant des moniteurs en Cu. D'autre part, en mesurant les intensités de rayonnement avec une chambre d'ionisation, ils trouvent, que le faisceau est d'autant plus directif que la cible est mince (les épaisseurs d'or utilisées variaient de $51,5 \text{ mg cm}^{-2}$ à 7250 mg cm^{-2}), mettant ainsi en évidence d'une façon très nette l'influence de la diffusion multiple des électrons dans le convertisseur sur la distribution angulaire du faisceau de photons.

IV - Conception et réalisation des équipements pour le conditionnement et l'irradiation des échantillons

Dans le problème qui nous intéresse, il s'agit d'irradier des échantillons, de telle façon que les activités induites dans les impuretés qu'il contient soient maximales, pour une énergie et une intensité de faisceau données.

Pour obtenir ce résultat, il faut donc remplir d'après l'étude qui précède, les conditions suivantes :

- La cible, conformément à ce que prévoit la théorie du rayonnement de freinage, doit être constituée d'un matériau de Z élevé. Son épaisseur, devrait être voisine de la valeur optimale. Mais alors, le faisceau d'électrons bombarde directement l'échantillon et les températures atteintes seraient trop élevées. On choisit par conséquent une épaisseur supérieure, correspondant à l'absorption totale du faisceau d'électrons. Il en résulte une atténuation du flux de photons. Il nous semble que, compte tenu de l'existence du gradient d'activation

longitudinal, cette solution est préférable à celle consistant à utiliser une déviation électromagnétique du faisceau d'électrons au delà de la cible. L'espace nécessité par cette installation introduirait en effet une perte d'activation supérieure à celle correspondant à l'atténuation du flux de photons dans l'épaisseur supplémentaire de la cible.

Par contre, pour éviter un investissement trop important dans les cibles, on peut juxtaposer d'une part, une épaisseur optimale de platine pour avoir le faisceau de photons maximal et une épaisseur supplémentaire d'aluminium pour absorber l'excédent d'énergie des électrons. Ce matériau est préférable au cuivre par exemple, car c'est un des rares à ne s'activer que relativement peu dans les faisceaux de photons, en donnant du sodium 24 de période 15,4 h au moyen d'une réaction (n, α) avec les neutrons rapides secondaires.

Cette cible composite donne des résultats sensiblement identiques à celle en platine pur d'épaisseur équivalente. Et, elle présente l'avantage d'être deux à trois fois moins coûteuse, ce qui est loin d'être négligeable quand on est intéressé par des expériences à plusieurs énergies, nécessitant par conséquent le nombre de cibles correspondant afin d'avoir dans chaque cas l'activation maximale.

- Les échantillons doivent être positionnés pendant l'irradiation, avec précision, aussi près que possible de la cible dans l'axe du faisceau, et cela d'une façon reproductible. Leurs dimensions maximales sont à limiter si l'on désire une activation sensiblement homogène. Dans le cas de l'accélérateur utilisé, dont le faisceau sur la cible de platine, a un diamètre voisin de 10 mm, on prend $\varnothing < 20$ mm et une épaisseur de quelques mm au plus. Rappelons en effet que l'épaisseur moitié, qui atténue par conséquent le flux de photons d'un facteur 2 est voisine de 5 mm pour des matériaux lourds comme le platine. Il faut donc que les échantillons de cette nature aient des épaisseurs très inférieures. Enfin, le faisceau d'électrons n'est certainement pas réparti homogènement dans l'aire qui le limite. De plus, l'expérience montre qu'il se déplace sur la cible en cours d'une irradiation même de quelques minutes seulement. Il est donc indispensable, pour que l'activation soit effectivement uniforme de faire tourner la cartouche contenant l'échantillon autour de l'axe du faisceau.

a) - Températures atteintes dans le faisceau
.....

On a mesuré les températures sur la face arrière des cibles refroidies annulairement et dans un cylindre d'aluminium contenu dans une cartouche d'irradiation. La position des thermocouples utilisés est indiquée sur le schéma de la figure 43. Les résultats obtenus sont représentés par les courbes des figures 44 et 45, qui donnent, la variation des températures en fonction du temps. L'origine étant le début de l'irradiation. L'énergie des électrons était de 35 MeV, l'intensité moyenne mesurée sur la cible de platine d'épaisseur $12,9 \text{ g cm}^{-2}$, $50 \mu\text{A}$.

Le parcours d'électrons de 35 MeV est de 16 g cm^{-2} dans Al, $14,5 \text{ g cm}^{-2}$ dans Cu et $12,2 \text{ g cm}^{-2}$ dans Pt [26] . Le faisceau est donc totalement absorbé dans les cibles à l'exception de celles en platine d'épaisseur 6,5 et $4,3 \text{ g cm}^{-2}$ pour lesquelles l'énergie du faisceau émergent est respectivement de 10 MeV et 16 MeV environ.

Les courbes obtenues montrent, que d'une part, il est impossible d'irradier un échantillon derrière une cible d'épaisseur inférieure au parcours des électrons. D'autre part, que l'on peut atteindre des températures supérieures à 300°C dans la cartouche. L'échauffement dans l'échantillon est dû à l'absorption des photons, il dépend donc du matériau irradié, de son volume et des possibilités de dissipation thermique dans l'environnement.

Les différences des températures atteintes par les trois cibles s'expliquent certainement par le fait, que les contacts thermiques avec la surface annulaire refroidie par circulation d'eau sont plus ou moins efficaces. Le platine ayant la plus faible épaisseur linéaire, est à ce point de vue certainement le plus désavantagé.

Quant aux températures dans la cartouche, elles varient proportionnellement au flux total de photons. L'échauffement plus important avec la cible de platine est donc tout à fait normal. Nous pensons d'autre part que la croissance lente mais régulière de la température dans la cartouche, est simplement due à l'échauffement progressif du milieu ambiant, entraînant une réduction notable de l'échange thermique de la cartouche avec l'extérieur.

Ces résultats montrent, que les températures atteintes par les cibles sont non négligeables. Si l'on utilise des faisceaux puissants, il est donc impératif d'avoir un matériau de cible inaltérable au cours du temps. Par exemple avec le tantale, on a observé une très forte oxydation de la face irradiée par les électrons. Le platine et l'or sont pratiquement les seuls métaux qui remplissent les conditions requises, Z suffisamment grand, température de fusion élevée et inaltérables dans les faisceaux d'électrons. D'où le choix du platine dont l'activation par les photons est bien moindre que celle de l'or, pour constituer les cibles.

b) - Conditionnement des échantillons pendant l'irradiation
.....

De nombreux types de cartouches d'irradiation ont été successivement utilisés ces dernières années [24] [27] [28] . Les unes, se fermaient par un couvercle se vissant sur le corps. Dans les autres, on avait recours à un ressort pour plaquer l'échantillon contre le fond de la cartouche. Leur principal inconvénient commun, était que, souvent, lors de leur expédition dans le montage d'irradiation, sous l'influence du choc à l'arrivée (la vitesse des cartouches dans le pneumatique est voisine de 10 ms^{-1}) le système de fermeture se détraquait, bloquant la cartouche dans le montage. D'autre part, il fallait les usiner. Leur prix relativement élevé ne permettait donc pas de les jeter sans avoir été utilisées à plusieurs reprises. Il en résultait que leur activité augmenta régulièrement bien qu'elles fussent en aluminium, les rendant de plus en plus difficilement manipulables. De plus, par suite de leur usure dans le circuit pneumatique long de 200m environ on augmentait encore le nombre d'incidents.

Aussi, pour s'affranchir de toutes ces difficultés, on adopta le principe des cartouches consommables. Elles sont en aluminium comme les précédentes, mais embouties. Elles se composent de différentes parties comme l'indique la figure 46. Ses dimensions sont données figure 47.

Leur fermeture est effectuée par sertissage dans une presse de 8 tonnes (Cf. figure 48). Au retour de l'accélérateur on les dessertit au moyen d'une presse de 10 tonnes installée dans une cellule blindée dans laquelle arrivent les circuits pneumatiques. L'échantillon est récupéré en moins de 30 secondes.

Les photographies des figures 49 et 50 montrent la cellule blindée vue du côté des pupitres de commande des pneumatiques et de la presse, et cette dernière dans la cellule avec une cartouche dans l'étau de serrage ouvert.

c) - Montage d'irradiation

.....

Il est schématiquement représenté sur la figure 51. Les cartouches en position d'irradiation se trouvent dans un logement qui tourne autour de l'axe du faisceau au moyen d'une petite turbine à air comprimé. La vitesse de rotation, variable en fonction de la pression d'air est de quelques dizaines de tours par minute. La face arrière des cibles est refroidie par circulation d'eau. Elles sont montées sur un changeur télécommandé qui comporte plusieurs logements, chacun recevant une cible d'épaisseur en rapport avec l'énergie souhaitée, l'un étant réservé pour le quartz fluorescent afin qu'on puisse contrôler le centrage du faisceau lors des expériences. La mise en place des cibles ou du quartz est obtenue au moyen d'un vérin hydraulique.

Le bloc qui contient les roulements à billes et la turbine a été spécialement étudié pour éviter les grippages qui pourraient se produire consécutivement aux échauffements et refroidissements successifs que subissent certaines de ses parties. Il est refroidi à l'intérieur par un circuit d'eau.

Ce montage demeure en permanence dans la chambre des cibles de l'accélérateur linéaire. Les cibles sont à environ 30 cm de la sortie de l'accélérateur. On sait que cette distance devrait être réduite au strict minimum, pour éviter l'élargissement du faisceau d'électrons par suite de la diffusion des particules respectivement dans la fenêtre de sortie de l'accélérateur, en aluminium, et dans l'air. N'étant pas le principal utilisateur de la machine nous n'avons pu nous approcher à moins de 30 cm.

A la fin des expériences, le montage est ramené verticalement contre le mur de la chambre des cibles afin de dégager la place pour les autres expérimentateurs. La mise en position d'irradiation du système est actuellement manuelle. Elle s'effectue en moins d'une minute

Il est prévu qu'elle puisse se faire par télécommande ultérieurement. Un courant d'air comprimé, amené par le tuyau du pneumatique, souffle sur les cartouches pendant leur rotation. Ce moyen de refroidissement n'est certainement pas le plus efficace, mais permet déjà de réduire sensiblement les températures atteintes dans les échantillons. Une étude plus approfondie de ce problème de refroidissement des échantillons pendant l'irradiation s'impose.

Les photographies des figures 52 et 53 représentent la première, le montage en position pour les irradiations, la seconde, quand il est relevé contre le mur, à la fin des expériences.

V - Courbes d'activation

Elles représentent en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons, l'activité spécifique de l'élément irradié. Pour les déterminer on a irradié des moniteurs minces de diamètre 20 mm, pendant 1 minute, dans un faisceau d'intensité $100\mu\text{A}$ moyen mesurée par la ferrite. La distance entre la face arrière de la cible utilisée (Pt 12, 9 g cm^{-2}) et les moniteurs était de 5 mm. Les éléments dont nous avons déterminé la courbe d'activation par réaction (γ, n) sont ceux du tableau I. On a de plus déterminé des courbes d'activation concernant d'autres réactions photonucléaires indiquées dans le tableau II. Elles interviennent en tant que réactions nucléaires compétitives dans les dosages de carbone, d'azote et de fluor.

Les nombres portés en ordonnée sur chacune des séries de courbes construites (Cf. figure 54 à 60) sont :

- les désintégrations par minute et par μg d'élément, pour ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O et ^{18}F qui sont des émetteurs β^+ purs.

- le nombre de β^+ émis par minute et par μg pour les autres, à l'exception de l'or et du plomb, non émetteurs β^+ , pour lesquels on indique le nombre de photons γ émis par μg et par minute avec des énergies respectivement de 0,35 MeV pour ^{196}Au et 0,28 MeV pour ^{203}Pb .

TABLEAU I

Eléments dont on a déterminé les courbes d'activation (γ, n)

Elément	Réaction Photonucléaire	Abondance isotopique % d'après [31]	Seuil en MeV d'après [30]	Période de l'isotope produit d'après [31]	Composé irradié
C	$^{12}\text{C} (\gamma, n) ^{11}\text{C}$	98,9	18,7	20,3 min	Graphite, $\text{C}_2 \text{H}_3 \text{Cl}$ et $\text{C}_2 \text{F}_4$
N	$^{14}\text{N} (\gamma, n) ^{13}\text{N}$	99,6	10,5	9,96 "	AlN et $\text{Be}_3 \text{N}_2$
O	$^{16}\text{O} (\gamma, n) ^{15}\text{O}$	99,8	15,7	2,03 "	Mica $\text{K}_2 \text{O}$, $3\text{Al}_2 \text{O}_3$, 6SiO_2 , $2\text{H}_2\text{O}$
F	$^{19}\text{F} (\gamma, n) ^{18}\text{F}$	100	10,5	109,7 "	$\text{C}_2 \text{F}_4$
Na	$^{23}\text{Na} (\gamma, n) ^{22}\text{Na}$	100	12,4	2,62 années	$\text{SO}_4 \text{Na}_2$
Cl	$^{35}\text{Cl} (\gamma, n) ^{34}\text{Cl}$	75,5	12,6	32 min.	$\text{C}_2 \text{H}_3 \text{Cl}$
K	$^{39}\text{K} (\gamma, n) ^{38}\text{K}$	93,1	13,1	7,7 "	Mica $\text{K}_2 \text{O}$, $3\text{Al}_2 \text{O}_3$, 6SiO_2 , $2\text{H}_2\text{O}$
Ti	$^{46}\text{Ti} (\gamma, n) ^{45}\text{Ti}$	7,9	13,2	3,08 heures	Métal
Ni	$^{58}\text{Ni} (\gamma, n) ^{57}\text{Ni}$	67,9	12,2	36 "	"
Cu	$^{63}\text{Cu} (\gamma, n) ^{62}\text{Cu}$	69,1	10,8	9,76 min.	"
	$^{65}\text{Cu} (\gamma, n) ^{64}\text{Cu}$	30,9	9,9	12,8 heures	"
Zr	$^{90}\text{Zr} (\gamma, n) ^{89}\text{Zr}$	51,5	11,9	78,4 "	"
Mo	$^{92}\text{Mo} (\gamma, n) ^{91}\text{Mo}$	15,8	13,1	15,5 min.	"
Ag	$^{107}\text{Ag} (\gamma, n) ^{106}\text{Ag}$	51,3	9,4	24 "	"
Cd	$^{106}\text{Cd} (\gamma, n) ^{105}\text{Cd}$	1,2	12,2	55 min.	Métal
Sn	$^{112}\text{Sn} (\gamma, n) ^{111}\text{Sn}$	0,96	11,1	35 "	"
Au	$^{197}\text{Au} (\gamma, n) ^{196}\text{Au}$	100	8,1	6,2 jours	"
Pb	$^{204}\text{Pb} (\gamma, n) ^{203}\text{Pb}$	1,48	8,4	52,1 heures	"

TABLEAU II

Eléments dont on a déterminé des courbes d'activation, relatives à d'autres
réactions photonucléaires, intervenant en tant que réactions compétitives
dans les dosages de carbone, azote et fluor

Elément	Réaction Photonucléaire	Abondance isotopique % d'après [31]	Seuil en MeV d'après [30]	Période de l'isotope produit d'après [31]	Composé irradié
N	$^{14}\text{N} (\gamma, t) ^{11}\text{C}$	99,6	22,7	20,3 min.	$\text{Be}_3 \text{N}_2$
O	$^{16}\text{O} (\gamma, t) ^{13}\text{N}$	99,8	25	9,96 "	BeO
	$^{16}\text{O} (\gamma, an) ^{11}\text{C}$	"	26	20,3 "	"
Na	$^{23}\text{Na} (\gamma, an) ^{18}\text{F}$	100	21	109,7 "	$\text{SO}_4 \text{Na}_2$

De plus, toutes les valeurs représentent les activités à la fin de l'irradiation d'une minute.

Dans des publications antérieures [28] [29] nous avons déjà donné des courbes d'activation pour C, N et O dans la même gamme d'énergie. Celles du présent travail ont été déterminées en adoptant des conditions expérimentales précises, telle la mesure de l'intensité au moyen de la ferrite et non sur la cible, le même diamètre de 20 mm pour tous les moniteurs, une distance cible moniteur constante de 5 mm. Les valeurs des anciennes courbes et de celles-ci pour ^{11}C , ^{13}N et ^{15}O sont d'ailleurs voisines. Les légères différences que l'on constate sont imputables aux changements des paramètres d'irradiation.

Il faut aussi remarquer que les activités induites, indépendamment des caractéristiques géométriques définies ci-dessus, de l'énergie et de l'intensité du faisceau, sont fonctions du diamètre de ce dernier et de son spectre en énergie. Toutes les expériences considérées ici, ont été effectuées sur la voie directe de l'accélérateur linéaire, alors que les anciens résultats publiés sont relatifs à l'utilisation d'une voie déviée n'existant plus actuellement, pour laquelle le spectre en énergie des électrons était plus fin.

VI - Application à l'étude des possibilités offertes par l'activation par les photons γ en vue de déterminer de très faibles quantités d'éléments

a) - Eléments légers C, N, O et F

Les réactions nucléaires au moyen desquelles on les détermine, les principales réactions compétitives produisant le même isotope que celui mesuré pour le dosage, les seuils énergétiques, sont rassemblés dans le tableau III. Toutes les réactions nucléaires compétitives possibles n'y figurent pas. Quelques unes seulement ont fait l'objet de nos expériences.

TABLEAU III
Réactions photonucléaires au moyen desquelles on détermine C, N, O et F
Principales réactions compétitives produisant le même isotope actif

Elément à doser	Réaction nucléaire utilisée pour le dosage	Seuil en MeV d'après [30]	Principales réactions compétitives	Seuil en MeV d'après [30]
C	$^{12}\text{C} (\gamma, n) ^{11}\text{C}$	18,7	$^{14}\text{N} (\gamma, t) ^{11}\text{C}$	22,7
			$^{16}\text{O} (\gamma, \alpha n) ^{11}\text{C}$	26
			$^{16}\text{O} (\gamma, t) ^{13}\text{N}$	25
N	$^{14}\text{N} (\gamma, n) ^{13}\text{N}$	10,5	$^{19}\text{F} (\gamma, \alpha 2n) ^{13}\text{N}$	25,4
			$^{19}\text{F} (\gamma, tn) ^{15}\text{O}$	27,4
O	$^{16}\text{O} (\gamma, n) ^{15}\text{O}$	15,7	$^{20}\text{Ne} (\gamma, \alpha n) ^{15}\text{O}$	20,4
			$^{20}\text{Ne} (\gamma, d) ^{18}\text{F}$	21,1
F	$^{19}\text{F} (\gamma, n) ^{18}\text{F}$	10,5	$^{23}\text{Na} (\gamma, \alpha n) ^{18}\text{F}$	21

1 - Importance relative des réactions nucléaires compétitives

Dans le tableau IV, nous indiquons, d'après les courbes d'activation précédentes, pour plusieurs énergies, les quantités d'azote, d'oxygène et de sodium, qu'il faut, pour obtenir la même activité, qu'avec 1 μ g de carbone, d'azote et de fluor. A partir de ces nombres on a construit les courbes de la figure 61 qui représentent en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons, les rapports des activités spécifiques de l'élément à doser et de celui interférant par production du même isotope.

Les valeurs du tableau IV et ces courbes montrent que dans les cas les plus défavorables, la contribution des réactions nucléaires compétitives en dessous de 40 MeV ne dépasse pas quelques pour cent, pour une même teneur des deux impuretés dans l'échantillon. Enfin, elles montrent aussi, que pour des énergies inférieures à 30 MeV, leur influence devient rapidement négligeable à l'exception de l'interférence de l'azote dans les dosages de carbone pour laquelle par ailleurs, on trouve des valeurs différentes de celles obtenues antérieurement [32] [33] , par activation dans la voie déviée, tout en ayant utilisé le même composé, $\text{Be}_3 \text{N}_2$, dans les deux séries d'expériences. Ce désaccord à notre avis, ne peut s'expliquer qu'à partir d'une erreur de réglage en énergie dans les anciennes expériences, lors desquelles, on détermina séparément chacune des courbes, alors que dans les expériences présentes, pour chaque énergie, on irradiait tous les moniteurs successivement.

On a irradié un échantillon de $\text{Be}_3 \text{N}_2$ à 25 MeV pour doser le carbone qu'il contient, d'une façon non destructive. Nous n'avons pas pu mettre en évidence la présence de carbone, de sorte que nous avons conclu, que la teneur en carbone du $\text{Be}_3 \text{N}_2$ utilisé est inférieure à 5 mg/g. Les résultats obtenus sont donc bien représentatifs de la réaction nucléaire compétitive $^{14}\text{N} (\gamma, t) ^{11}\text{C}$.

Notons , en ce qui concerne l'interférence de l'oxygène dans les dosages de carbone d'une part, d'azote d'autre part; on se trouve aussi devant un léger désaccord par rapport aux valeurs publiées antérieurement [32] [33] . Il est d'ailleurs dans le même sens, bien que moins important

TABLEAU IV

Quantités de N, O et Na pour lesquelles les mêmes
activités sont obtenues qu'avec 1 µg de C, N et F

Energie du faisceau en Me V	La même activité est obtenue en irradiant			
	µg de N	1 µg de C ou µg de O	1 µg de N ou µg de O	1 µg de F ou µg de Na
26				
27			> 3.700	> 11.000
30	56	> 12.500	800	5.600
32	50	1.000	300	145
34	41	800	200	105
36	35,5	520	153	85
38	34,5	370	112	70
40	32	275	85	58
42	31	207	67	52
		160		45

que le précédent. Ce qui confirmerait l'hypothèse d'un mauvais réglage en énergie lors des premières expériences.

Il est regrettable que par manque de disponibilité de l'accélérateur (la machine a en effet été arrêtée prématurément pour transformation des sections d'accélération), nous n'ayons pu déterminer la courbe d'activation de la réaction $^{14}\text{N}(\gamma, t) \text{ } ^{11}\text{C}$ en dessous de 30 MeV.

Il est néanmoins probable d'après le résultat négatif de mesure de l'activité carbone 11 dans le Be_3N_2 d'une part et la forme des courbes de la figure 61 pour les autres cas d'interférences, que la courbe $^{11}\text{C}_\text{C}/^{11}\text{C}_\text{N}$ se caractérise elle aussi par une montée rapide entre 25 et 30 MeV.

D'après tous ces résultats, compte tenu de ce que les autres réactions nucléaires compétitives du tableau III sont du même type que celles étudiées, on peut admettre qu'il y a de grandes chances que celles de seuils voisins de 20 MeV, sur le Ne en particulier, soient elles aussi négligeables en dessous de 25 MeV, et que, pour des énergies inférieures à 40 MeV, toutes ces réactions n'introduiraient pour des teneurs égales dans l'échantillon, des incertitudes au plus de quelques pour cent.

Quant à des réactions nucléaires plus complexes, les Q de quelques unes supposées possibles, ont été calculées en utilisant les tables des excès de masse publiées par J. B. MARION et F. C. YOUNG [34]. Les valeurs obtenues (Cf. Tableau V) montrent que les seuils sont supérieurs à 25 MeV dans tous les cas considérés. Pour des noyaux plus lourds, l'effet de la barrière de potentiel doit entraîner une diminution de section efficace telle, que nous pouvons les exclure à priori, de la liste des éléments, à partir desquels on pourrait obtenir ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O et ^{18}F par activation dans des photons d'énergie inférieure à 40 MeV, d'une façon telle, que les dosages de C, N, O et F soient perturbés.

2 - Sensibilité de détection en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons.

Nous la définissons arbitrairement comme étant la quantité d'élément qui, irradiée dans un faisceau d'intensité 100 μA mesurée au moyen de la ferrite, pendant une période, donne une activité à la fin de

TABLEAU V

Valeurs des Q de réactions photonucléaires qui pourraient produire

^{11}C , ^{13}N , ^{15}O et ^{18}F

^{11}C		^{13}N		^{15}O		^{18}F	
Réaction supposée exister	Q calculé en MeV	Réaction supposée exister	Q calculé en MeV	Réaction supposée exister	Q calculé en MeV	Réaction supposée exister	Q calculé en MeV
$^{19}\text{F}(\gamma, \alpha \text{tn})^{11}\text{C}$	37, 6	$^{19}\text{F}(\gamma, ^6\text{He})^{13}\text{N}$	24, 4	$^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha \text{tn})^{15}\text{O}$	37, 8	$^{24}\text{Mg}(\gamma, \alpha \text{d})^{18}\text{F}$	30, 4
$^{19}\text{F}(\gamma, ^8\text{Li})^{11}\text{C}$	33	$^{20}\text{Ne}(\gamma, \alpha \text{t})^{13}\text{N}$	29, 8	$^{23}\text{Na}(\gamma, ^8\text{Li})^{15}\text{O}$	33, 3	$^{24}\text{Mg}(\gamma, ^6\text{Li})^{18}\text{F}$	29
$^{20}\text{Ne}(\gamma, 2\alpha \text{n})^{11}\text{C}$	30, 6	$^{20}\text{Ne}(\gamma, ^7\text{Li})^{13}\text{N}$	27, 3	$^{24}\text{Mg}(\gamma, 2\alpha \text{n})^{15}\text{O}$	29, 7	$^{27}\text{Al}(\gamma, 2\alpha \text{n})^{18}\text{F}$	31
$^{20}\text{Ne}(\gamma, ^9\text{Be})^{11}\text{C}$	29	$^{23}\text{Na}(\gamma, 2\alpha 2 \text{n})^{13}\text{N}$	36	$^{24}\text{Mg}(\gamma, ^9\text{Be})^{15}\text{O}$	28, 1	$^{27}\text{Al}(\gamma, ^9\text{Be})^{18}\text{F}$	29, 4
$^{23}\text{Na}(\gamma, 2\alpha \text{tn})^{11}\text{C}$	48	$^{23}\text{Na}(\gamma, ^{10}\text{Be})^{13}\text{N}$	27, 5	$^{27}\text{Al}(\gamma, 2\alpha \text{tn})^{15}\text{O}$	47, 9	$^{28}\text{Si}(\gamma, 2\alpha \text{d})^{18}\text{F}$	40, 3
$^{23}\text{Na}(\gamma, ^{12}\text{B})^{11}\text{C}$	33, 5	$^{24}\text{Mg}(\gamma, 2\alpha \text{t})^{13}\text{N}$	39	$^{27}\text{Al}(\gamma, ^{12}\text{B})^{15}\text{O}$	33, 4	$^{28}\text{Si}(\gamma, ^{10}\text{B})^{18}\text{F}$	34, 4
$^{24}\text{Mg}(\gamma, 3\alpha \text{n})^{11}\text{C}$	40	$^{24}\text{Mg}(\gamma, ^{11}\text{B})^{13}\text{N}$	28	$^{28}\text{Si}(\gamma, 3\alpha \text{n})^{15}\text{O}$	39, 7	$^{31}\text{P}(\gamma, 3\alpha \text{n})^{18}\text{F}$	40, 7
$^{24}\text{Mg}(\gamma, ^{13}\text{C})^{11}\text{C}$	27, 7	$^{27}\text{Al}(\gamma, 3\alpha 2 \text{n})^{13}\text{N}$	46	$^{28}\text{Si}(\gamma, ^{13}\text{C})^{15}\text{O}$	27, 5	$^{31}\text{P}(\gamma, ^{13}\text{C})^{18}\text{F}$	28, 5
$^{27}\text{Al}(\gamma, ^{16}\text{N})^{11}\text{C}$	33, 5	$^{27}\text{Al}(\gamma, ^{14}\text{C})^{13}\text{N}$	25, 6	$^{31}\text{P}(\gamma, ^{16}\text{N})^{15}\text{O}$	33	$^{32}\text{S}(\gamma, 3\alpha \text{d})^{18}\text{F}$	47, 3
$^{28}\text{Si}(\gamma, ^{17}\text{O})^{11}\text{C}$	31, 3	$^{28}\text{Si}(\gamma, ^{15}\text{N})^{13}\text{N}$	26, 9	$^{32}\text{S}(\gamma, ^{17}\text{O})^{15}\text{O}$	28	$^{32}\text{S}(\gamma, ^{14}\text{N})^{18}\text{F}$	29, 7
$^{31}\text{P}(\gamma, ^{20}\text{F})^{11}\text{C}$	35	$^{31}\text{P}(\gamma, ^{18}\text{O})^{13}\text{N}$	29	$^{35}\text{Cl}(\gamma, ^{20}\text{F})^{15}\text{O}$	31, 8	$^{35}\text{Cl}(\gamma, ^{17}\text{O})^{18}\text{F}$	29
$^{32}\text{S}(\gamma, ^{21}\text{Ne})^{11}\text{C}$	30, 9	$^{32}\text{S}(\gamma, ^{19}\text{F})^{13}\text{N}$	30	$^{36}\text{Ar}(\gamma, ^{21}\text{Ne})^{15}\text{O}$	27, 4	$^{35}\text{Cl}(\gamma, 4\alpha \text{n})^{18}\text{F}$	47, 6

l'activation de 1000 désintégrations par minute. Les valeurs calculées à partir des courbes d'activation sont dans le tableau VI. Elles résument les performances possibles correspondant aux conditions expérimentales adoptées dans ce travail. C'est-à-dire une cible de platine d'épaisseur $12,9 \text{ g cm}^{-2}$ et une distance cible moniteur ($\varnothing 20 \text{ mm}$) de 5 mm. Les résultats avec d'autres arrangements géométriques seront naturellement différents.

Nous avons choisi 1000 dpm dans la définition précédente du fait, qu'une pareille activité à l'origine, même après traitement chimique de l'échantillon pendant 2 à 3 périodes, correspond à des taux de comptage acceptables. Il n'est pas exclu qu'avec des équipements spécialement conçus à hautes performances on puisse déterminer des quantités inférieures à celles du tableau VI. Surtout dans le cas du carbone et du fluor où l'on peut faire des comptages pendant plusieurs minutes, compte tenu de la période des isotopes produits.

Enfin, cette activité arbitraire, constitue une valeur de référence indépendante des appareils utilisés pour les comptages, dont le mouvement propre et le bruit de fond variables d'une installation à l'autre, limitent la sensibilité.

b) - Autres éléments
.....

L'activation dans les photons γ permet naturellement de doser aussi d'autres éléments que C, N, O et F. Dans le tableau VII on indique les sensibilités de détection des éléments dont nous avons déterminé les courbes d'activation. Comme précédemment, pour uniformiser l'ensemble des résultats, on suppose que la durée d'irradiation est équivalente à une période, bien que cela ne soit facilement réalisable pour des éléments comme Ni, Zr, Au et Pb dont les périodes atteignent plusieurs dizaines d'heures et absolument impossible dans le cas du sodium. De plus, pour les éléments dont l'isotope est émetteur β^+ , on prend comme activité de référence 1000 β^+ émis par minute, pour les deux autres, Au et Pb, 1000 photons γ émis par minute, d'énergie 0,35 MeV pour ^{196}Au et 0,28 MeV pour ^{203}Pb . Ces deux énergies correspondent en effet aux pics les plus importants dans les spectres obtenus au moyen de détecteurs équipés de Na I (Tl) de 80 mm x 100 mm.

TABLEAU VI

Sensibilité de détection de C, N, O et F en fonction de
l'énergie du faisceau d'électrons

Elément	Isotope mesuré	Période	Sensibilité de détection			
			25 MeV	30 MeV	35 MeV	40 MeV
C	¹¹ C	20,3 min.	1 10 ⁻⁶ g	0,14 10 ⁻⁶ g	0,05 10 ⁻⁶ g	0,025 10 ⁻⁶ g
N	¹³ N	9,96 "	0,83 "	0,28 "	0,14 "	0,08 "
O	¹⁵ O	2,03 "	1 "	0,19 "	0,067 "	0,036 "
F	¹⁸ F	109,7 "	0,13 "	0,065 "	0,036 "	0,022 "

TABLEAU VII

Sensibilité de détection des autres éléments dont on a déterminé la courbe d'activation (χ, n) en fonction de l'énergie du faisceau

Elément	Isotope mesuré	Période	Sensibilité de détection			
			25 MeV	30 MeV	35 MeV	40 MeV
Na	^{22}Na	2,62 années				
Cl	^{34}Cl	32 min.	$0,62 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	$0,33 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	$0,03 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	$0,017 \cdot 10^{-6} \text{ g}$
K	^{38}K	7,7 "	0,45 "	0,16 "	0,18 "	0,11 "
Ti	^{45}Ti	3,08 heures	1,4 "	0,58 "	0,072 "	0,033 "
Ni	^{57}Ni	36 "	0,28 "	0,12 "	0,26 "	0,14 "
Cu	^{62}Cu	9,76 min.	0,057 "	0,036 "	0,063 "	0,045 "
	^{64}Cu	12,8 heures	0,45 "	0,16 "	0,014 "	0,0095 "
Zr	^{89}Zr	78,4 "	0,23 "	0,1 "	0,076 "	0,045 "
Mo	^{91}Mo	15,5 min.	0,32 "	0,16 "	0,050 "	0,032 "
Ag	^{106}Ag	24 "	0,06 "	0,032 "	0,09 "	0,055 "
Cd	^{105}Cd	55 "	3,2 "	1,3 "	0,018 "	0,011 "
Sn	^{111}Sn	35 "	5,7 "	2,7 "	0,66 "	0,39 "
Au	^{196}Au	6,2 jours	0,0069 "	0,0037 "	1,6 "	1 "
Pb	^{203}Pb	52,1 heures	0,81 "	0,37 "	0,0021 "	0,0012 "
					0,18 "	0,10 "

De nombreux autres éléments sont également dosables avec d'excellentes sensibilités comme le montrent plusieurs publications. Dans le domaine des terres rares on peut citer les travaux de Y. OKA T. KATO, I. NAGAI [35] utilisant un accélérateur linéaire de 20 MeV et ceux de A. OWLYA, R. ABDEYAZDAN, Ph. ALBERT [36] qui irradièrent de 25 à 45 MeV. En ce qui concerne les autres éléments métalliques signalons les travaux de E. SCHWEIKERT, Ph. ALBERT [37] J. L. DEBRUN [38], J. L. DEBRUN et Ph. ALBERT [39], Y. OKA T. KATO, K. NOMURA, T. SAITO [40], C. A. BAKER [41]. Ces divers auteurs donnent dans leurs publications des tableaux, des sensibilités possibles, aux énergies respectivement utilisées.

Comme pour les éléments légers, il peut exister des réactions nucléaires compétitives. Elles n'ont pas fait l'objet d'études systématiques. Par contre, dans leur étude, certains des auteurs précités [36] [38] [39] indiquent qu'ils ne sont pas arrivés à mettre en évidence des réactions pouvant interférer avec celles de type (γ, n) utilisées dans les dosages, bien que, énergétiquement elles soient possibles. Il est probable que c'est l'effet de la barrière de potentiel qui limite d'une façon très importante les sections efficaces des réactions compétitives pouvant effectivement perturber les dosages. Cela d'autant plus, que le Z de l'élément à déterminer est élevé.

c) - Comparaison de nos résultats avec ceux d'autres auteurs

G. J. LUTZ [17], a déterminé uniquement par le calcul, les sensibilités de dosage d'un grand nombre d'éléments, pour des énergies de faisceau de 25, 30 et 35 MeV, une intensité moyenne de $100\mu A$. Sa cible en tungstène a une épaisseur de 6 mm, le moniteur cylindrique ($\emptyset$ 10 mm, h 30 mm) est supposé à 3 cm dans l'axe du faisceau derrière la cible. Sa disposition géométrique cible-échantillon est donc sensiblement différente de la nôtre et telle d'après les résultats de l'étude de faisceau de photons que les activités induites devraient être inférieures à celles que l'on obtiendrait avec notre installation. D'autre part, G. J. LUTZ a calculé les désintégrations par seconde que l'on a, à la fin de l'irradiation de chaque élément. Ses valeurs furent converties telles quelles pour aboutir à des chiffres de sensibilités en μg correspondant à 1000 dpm pour une irradiation pendant 1 période. Compte tenu

de ce que tous les isotopes n'émettent pas 100% de β^+ , surtout dans les éléments lourds où la proportion de capture K croît rapidement, certaines des valeurs déduites des calculs seront surestimées par rapport aux mesures expérimentales.

Pour les trois énergies considérées l'ensemble des résultats théoriques d'après LUTZ d'une part, expérimentaux du présent travail d'autre part sont dans le tableau VIII.

On peut remarquer, que pour plusieurs éléments il y a un bon accord entre les deux séries de valeurs surtout à 30 et 35 MeV [C, O, K, Cu, Mo, Ag]. Pour presque tous les autres la différence est inférieure à un facteur 2, 5. Le plus souvent, elle est voisine de 2 d'ailleurs. Pour les uns, les valeurs calculées sont plus faibles (N, Cl, Cu, Zr, Sn), pour les autres, ce sont les valeurs expérimentales (F, Ti, Ni, Au, Pb).

A notre avis, d'après les valeurs du tableau VIII, on peut considérer, malgré la divergence d'un facteur 2 de certains résultats, l'accord entre les calculs théoriques et l'expérience comme étant très satisfaisant.

D'autres auteurs ont publié des tableaux contenant les limites de détection en μg de nombreux éléments, déterminées expérimentalement Rappelons celui de Y. OKA et al. [40] déjà cité précédemment, relatif à des irradiations faites à 20 MeV. Dans la même gamme d'énergie que la nôtre, on trouve essentiellement les résultats publiés par C. A. BAKER [41], J. L. DEBRUN [38], J. L. DEBRUN et Ph. ALBERT [39]. Les limites de détection en μg que donnent ces auteurs pour les éléments ayant fait l'objet de nos expériences, sont rassemblées dans le tableau IX.

Les résultats de C. A. BAKER sont relatifs à des irradiations d'une période, ou d'une heure si elle est plus grande, dans un faisceau d'intensité $5\mu\text{A}$, d'énergie 30 MeV. Sa cible en tungstène (épaisseur 1 mm) est à 10 cm de l'échantillon. La durée de comptage après activation est la même que celle d'irradiation. Les échantillons sont mesurés dans un cristal Na I (Tl) à puits. Les impulsions sont discriminées à 100 KeV. Il définit la limite de détection comme étant la quantité d'élément qui, à la fin de l'irradiation, donne un taux de comptage, égal à deux fois la

TABLEAU VIII

Comparaison entre les résultats déduits des calculs théoriques de
G. J. LUTZ [17] et ceux obtenus dans nos expériences

Elément	Isotope mesuré	Sensibilités de détection en μg				
		25 MeV		30 MeV		35 MeV
		Nos résultats	d'après G. J. Lutz	Nos résultats	d'après G. J. Lutz	Nos résultats d'après G. J. Lutz
C	^{11}C	1	0,55	0,14	0,17	0,050
N	^{13}N	0,83	0,33	0,28	0,083	0,14
O	^{15}O	1	0,33	0,19	0,11	0,067
F	^{18}F	0,13	0,30	0,065	0,12	0,036
Na	^{22}Na					0,030
Cl	^{34}Cl	0,62	0,33	0,33	0,16	0,18
K	^{38}K	0,45	0,37	0,16	0,16	0,072
Ti	^{45}Ti	1,4	2,5	0,58	1,2	0,26
Ni	^{57}Ni	0,28	0,53	0,12	0,18	0,063
Cu	^{62}Cu	0,057	0,067	0,036	0,033	0,014
	^{64}Cu	0,45	0,15	0,16	0,060	0,076
Zr	^{89}Zr	0,23	0,083	0,1	0,041	0,050
Mo	^{91}Mo	0,32	0,55	0,16	0,17	0,09
Ag	^{106}Ag	0,06	0,048	0,032	0,033	0,018
Sn	^{111}Sn	5,7	1,7	2,7	1,1	1,6
Au	^{196}Au	0,007	0,018	0,0037	0,010	0,0021
Pb	^{203}Pb	0,80	1,3	0,37	0,64	0,18
						0,43

TABLEAU IX

Limites de détection expérimentales d'après
C. A. BAKER [41], J. L. DEBRUN et Ph. ALBERT [38][39]

Elément	Isotope mesuré	Limite de détection			
		C. A. BAKER		J. L. DEBRUN et Ph. ALBERT	
		5 μ A	30 MeV	50 μ A	35 MeV
C	^{11}C	0, 01	μg		
N	^{13}N	0, 01	"		
O	^{15}O	0, 04	"		
F	^{18}F	0, 05	"	0, 0025	μg
Cl	^{34}Cl	0, 08	"	0, 05	"
K	^{38}K	2	"		
Ti	^{45}Ti	0, 1	"	0, 0025	"
Ni	^{57}Ni	0, 2	"	0, 001	"
Cu	^{62}Cu	0, 001	"		
Zr	^{89}Zr			0, 01	"
Mo	^{91}Mo	0, 2	"		
Ag	^{106}Ag	0, 02	"		
Au	^{196}Au			0, 005	"
Pb	^{203}Pb			0, 5	"

déviatiôn standard du bruit de fond. Ce dernier étant de 120 coups par minute.

J. L. DEBRUN et Ph. ALBERT, considèrent une durée unique d'irradiation de 20 minutes, dans un faisceau d'intensité $50 \mu\text{A}$ (mesurée sur la cible de platine de $12,9 \text{ g cm}^{-2}$, soit 6 mm) et d'énergie 35 MeV. La distance entre la cible et l'échantillon est de 5 mm. Ces auteurs ont en effet utilisé pour leurs travaux le même accélérateur linéaire que nous. Pour déterminer les sensibilités de détection, ils mesurent les activités avec un appareil muni d'un cristal Na I (Tl) de $76 \times 106 \text{ mm}$. Les temps de comptage sont d'environ $1/10$ de la période sans excéder toutefois 10 h. Les calculs sont ramenés comme précédemment à T_0 , moment de la fin de l'irradiation. Le taux de comptage adopté pour définir les limites de détection n'est pas indiqué.

L'intercomparaison entre les valeurs du tableau IX et celles de nos expériences n'est pas simple. En effet, nous indiquons des nombres découlant d'une définition arbitraire de la sensibilité, indépendante des performances des appareils de mesure. Quant aux auteurs précédents leurs sensibilités de détection sont définies à partir des taux de comptage limites, discernables du bruit de fond.

Il n'est donc pas étonnant, que l'on puisse trouver des divergences pour des conditions expérimentales identiques, très importantes. Il est certain d'un autre côté, qu'en partant avec 1000 dpm, β^+ ou γ , à la fin de l'irradiation, même après une séparation chimique de durée équivalente à 2 ou 3 périodes on dispose encore de suffisamment d'activité pour effectuer des comptages valables. De sorte que les sensibilités que nous indiquons sont certainement trop pessimistes pour des isotopes pouvant être séparés en moins d'une période.

En fait, il nous semble, que l'intérêt essentiel d'adopter une définition de la sensibilité telle que la nôtre est de pouvoir comparer explicitement des résultats d'origines expérimentales diverses sans ambiguïté.

Quant aux quantités minimales réellement déterminables elles dépendent, pour des conditions d'irradiation imposées, essentiellement des opérations qui suivent l'activation, surtout la durée des séparations chimiques et ensuite des performances des appareils de mesure.

C - ANALYSE PAR ACTIVATION AU MOYEN DE PARTICULES CHARGÉES.

I - Généralités

L'analyse par activation au moyen de particules chargées se différencie fondamentalement des autres moyens, utilisant les neutrons et les photons γ , par les points suivants :

- l'énergie de la particule diminue régulièrement en fonction de la pénétration dans l'échantillon, de sorte que la zone activée est limitée. Il en résulte une activation essentiellement hétérogène par principe. Les activités induites dans les tranches successives sont en corrélation directe avec la forme de la fonction d'excitation $\sigma = f(E)$ de la réaction nucléaire considérée.

- le pouvoir de ralentissement $\frac{dE}{dx}$ étant très important, la dissipation de l'énergie totale du faisceau est localisée dans un faible volume. L'énergie thermique spécifique, atteint donc des valeurs importantes, pouvant entraîner des phénomènes divers, diffusion des isotopes produits dans la masse de l'échantillon pendant l'irradiation, destruction partielle ou totale par vaporisation ou fusion.

- existence de la barrière coulombienne. Pour que la réaction se produise, la particule incidente doit posséder une énergie suffisante pour vaincre la répulsion coulombienne. Néanmoins, on sait qu'il existe une probabilité non nulle pour qu'une particule chargée d'énergie inférieure à la hauteur de la barrière puisse pénétrer dans le noyau. Cet effet "tunnel" ne doit donc pas être négligé à priori. D'autant plus que dans le domaine des analyses de traces, on s'intéresse à des rapports d'activation pouvant dépasser 10^9 .

a) - Parcours des particules chargées dans la matière

Le parcours d'une particule chargée peut se définir au moyen de la relation :

$$R = \int_0^E \frac{dE}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)}$$

E énergie cinétique de la particule chargée

$\frac{dE}{dx}$ pouvoir de ralentissement du matériau considéré, que l'on peut calculer au moyen de la formule classique de BETHE [42]

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{2 \pi z^2 e^4}{m_o c^2 \beta^2} N Z \left[\text{Log}_e \frac{2 m_o c^2 \beta^2 Q_{\max}}{I^2 (1 - \beta^2)} - 2 \beta^2 \right]$$

z numéro atomique de la particule chargée

e charge de l'électron

m_o masse au repos de l'électron

c vitesse de la lumière

$\beta = \frac{v}{c}$ v vitesse de la particule

NZ nombre d'électrons par unité de volume du matériau

$Q_{\max}$ énergie maximale transférée de la particule chargée à un électron.

I potentiel moyen d'ionisation des atomes du matériau

En fait, dans la formule précédente, on néglige deux effets :

- d'une part, la charge moyenne des particules est inférieure au numéro atomique à cause des effets de recombinaison aux très faibles vitesses.

- d'autre part, aux très faibles vitesses, l'interaction entre la particule incidente et les électrons fortement liés tend à être adiabatique.

Leur influence dans le domaine d'énergie qui nous intéresse est négligeable. De toute façon il existe des tables de parcours [42] dans lesquelles on en a tenu compte en modifiant empiriquement la formule de BETHE précédente.

Connaissant le pouvoir de ralentissement des protons celui des d, ^3He et α se détermine au moyen de relations simples [34] :

$$\left[\left(\frac{dE}{dx} \right)_d \right]_E = \left[\left(\frac{dE}{dx} \right)_p \right] \frac{1}{2} E$$

$$\left[\left(\frac{dE}{dx} \right)_{He} \right]_E = \left[4 \left(\frac{dE}{dx} \right)_p \right] \frac{1}{3} E$$

$$\left[\left(\frac{dE}{dx} \right)_\alpha \right]_E = \left[4 \left(\frac{dE}{dx} \right)_p \right] \frac{1}{4} E$$

Si le milieu traversé est composite on a

$$\left(\frac{dE}{dx} \right)_n = \frac{\sum_1^n N_i \left(\frac{dE}{dx} \right)_i}{\sum_1^n N_i}$$

n nombre de constituants différents

N_i nombre relatif d'atomes du constituant i

$\left(\frac{dE}{dx} \right)_i$ pouvoir de ralentissement du constituant i .

Une formule plus pratique d'emploi, est celle découlant de la règle de BRAGG [43]. Elle donne directement le parcours dans un milieu composite à partir de ceux relatifs à ses constituants

$$\frac{1}{R} = \sum_1^n \frac{\xi_i}{R_i}$$

R_i parcours de la particule chargée considérée dans l'élément chimique i

ξ_i concentration pondérale de l'élément i dans le milieu

Pour calculer le parcours d'une particule chargée de masse M , d'énergie E et de charge Z , connaissant celui du proton d'énergie $\frac{E}{M}$ on a la formule très pratique suivante [43]

$$R_{ZME} = \frac{M}{Z^2} R_p \left(\frac{E}{M} \right)$$

Une autre relation utile, est celle qui donne le parcours des ^3He à partir de celui des α [34] :

$$R_{^3\text{He}}(E) = \frac{3}{4} R_{\alpha} \left(\frac{4}{3} E \right)$$

b) - Seuil des réactions nucléaires
.....

L'énergie seuil E_s est l'énergie cinétique minimale de la particule incidente pour que la réaction nucléaire considérée puisse se produire.

Dans le système du centre de masse on a [44]

$$E_s = |Q|$$

Le Q de la réaction étant défini par l'expression générale

$$Q = (M + m) c^2 - \sum m_i c^2$$

M masse du noyau bombardé

m masse de la particule incidente

$\sum m_i c^2$ somme des énergies équivalentes aux masses de l'ensemble des noyaux et particules résultant de la réaction

Si $Q > 0$ le seuil est nul. Dans le système du laboratoire on a

$$E_s = |Q| \frac{M + m}{M}$$

c) - Hauteur de la barrière coulombienne
.....

On sait que pour pénétrer dans le noyau, la particule chargée incidente doit franchir la barrière coulombienne.

On peut la calculer au moyen de la relation simple [44]

$$B = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r_0 (A_1^{1/3} + A_2^{1/3})}$$

Z_1 numéro atomique du noyau cible

Z_2 numéro atomique de la particule incidente

e charge élémentaire

A_1 nombre de masse du noyau cible

A_2 nombre de masse de la particule incidente

r_0 coefficient voisin de $1,3 \cdot 10^{-13}$

On a représenté d'après [34], la variation de B en fonction de Z pour des protons et des α , figure 62, pour deux valeurs de r_0 respectivement égale à $1,2$ et $1,4 \cdot 10^{-13}$.

L'énergie cinétique que la particule chargée doit posséder pour franchir la barrière B est finalement, en tenant compte du recul du noyau cible

$$E_c = B \frac{A_1 + A_2}{A_1}$$

d) - Sources de particules chargées
.....

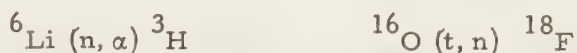
Rappelons que la radioactivité artificielle fut découverte en irradiant l'aluminium, le bore et le magnésium par les particules α émises par le polonium [1].

On utilise encore actuellement l'activation au moyen des particules α émises par des radioéléments comme le polonium 210 pour doser certains éléments légers en mesurant le nombre de neutrons résultant du bombardement de l'échantillon [45].

On peut aussi avoir recours aux particules chargées émises lors de réactions nucléaires induites par les neutrons d'un réacteur. Par exemple, dans un milieu hydrogéné, D. C. AUMANN et H. J. BORN [46] déterminent la concentration en oxygène 18 au moyen de la réaction

^{18}O (p, n) ^{18}F . L'échantillon est irradié dans le flux de neutrons rapides d'un réacteur. La collision élastique de ces neutrons avec les noyaux d'hydrogène donne des protons et des deutons. Dans un flux de $8,7 \cdot 10^{10} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ($E_n > 3,5 \text{ MeV}$), ces auteurs estiment que l'on peut déterminer 10^{-4} g d'oxygène 18.

Dès 1949, A.A. SMALES [47] signala la possibilité d'utiliser la réaction



pour déterminer l'oxygène dans un milieu contenant du lithium 6 par activation dans les neutrons thermiques. Cette méthode très particulière de dosage de l'oxygène a depuis, fait l'objet de nombreux travaux [48] .

Les techniques d'activation par réactions secondaires ne sont évidemment utilisables que dans des cas tout à fait exceptionnels. Leur champ d'application est donc relativement restreint.

Les flux très importants, dont on a en fait besoin pour les dosages de traces infimes ne sont obtenus qu'avec les accélérateurs de particules, Van de Graaff, cyclotron, accélérateur linéaire, éventuellement synchrocyclotron, bien que ce dernier type ne donne pas des faisceaux extraits, d'intensité aussi grande que les trois autres. De plus, l'énergie des particules chargées accélérées dans ces machines, n'est pas limitée à quelques MeV seulement, mais peut atteindre des valeurs suffisamment grande pour qu'elles puissent pénétrer de plusieurs dizaines voire centaines de microns dans les matériaux analysés.

II - Méthodes d'étalonnage

L'échantillon à analyser est irradié dans un faisceau de particules chargées. L'isotope que l'on obtient à partir de l'élément à doser est identifié qualitativement par la mesure du rayonnement qu'il émet et sa période de décroissance, éventuellement au moyen de ses propriétés chimiques en plus, s'il y a séparation avant comptage. On peut donc remonter au nombre total de noyaux actifs produits lors de l'irradiation. L'analyse a pour but de déterminer la quantité d'impureté

qu'il y a dans l'échantillon. Pour celà on a recours à l'étalonnage qui permet de relier le résultat de la mesure, à la teneur, objet du dosage.

On conçoit immédiatement que l'étalonnage avec les particules chargées est moins simple qu'en activation dans les neutrons et les photons γ , à cause de la diminution progressive de l'énergie des particules incidentes dans le matériau irradié et de l'activation inégale qui en résulte dans les différentes tranches successives de l'échantillon.

Pour faire un dosage, on peut avoir recours à plusieurs méthodes d'étalonnage que nous allons passer en revue.

a) - Méthode absolue
.....

On a la relation de base de l'analyse par activation

$$A = n \phi (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_i}^{E_f} \sigma_E \left(\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE \quad (1)$$

A Activité en désintégrations par seconde à la fin de l'irradiation de durée t secondes.

n nombre d'atomes par g d'échantillon, de l'espèce à doser

ϕ nombre de particules chargées par seconde

σ_E variation de la section efficace de la réaction nucléaire en fonction de l'énergie E.

E_i énergie incidente des particules chargées

E_f énergie des particules chargées après traversée de l'échantillon irradié. Si l'épaisseur de ce dernier est supérieure au parcours on a $E_f = E_s$, puisque

$$\sigma_E = 0 \quad \text{pour } E < E_s$$

$\frac{dE}{dx}$ pouvoir de ralentissement des particules chargées.

Compte tenu de ce que l'énergie des particules chargées dans le matériau irradié varie en fonction de la profondeur de pénétration, on peut mettre l'expression (1) sous la forme suivante, où l'on suppose que l'épaisseur de l'échantillon est supérieure au parcours des particules chargées :

$$A = n \phi (1 - e^{-\lambda t}) \int_0^{x_{E_s}} \sigma_x dx \quad (2)$$

σ_x variation de la section efficace en fonction de la pénétration des particules chargées dans l'échantillon

x_{E_s} épaisseur au bout de laquelle l'énergie des particules chargées est égale à l'énergie seuil E_s .

λ constante radioactive de l'isotope produit par activation de l'espèce à doser.

Donc, en connaissant la fonction $\sigma = f(E)$ on pourrait calculer l'intégrale des formules (1) et (2) à partir des relations parcours - énergie. La mesure de ϕ d'une part, celle de A d'autre part permettrait alors de déterminer n d'une façon absolue.

Cette méthode s'avère complexe et a été pratiquement peu utilisée. De plus, elle suppose que $\sigma = f(E)$ est connue.

Par contre si $E_i \approx E_f$ (1) devient

$$A = n \phi \sigma_E (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3)$$

Il suffit pour cela d'irradier des échantillons suffisamment minces pour que la dégradation en énergie des particules chargées soit telle, que l'on puisse supposer σ_E constant.

J. D. MAHONY détermina de cette façon l'oxygène dans le thorium, le carbone et l'oxygène simultanément dans l'or et le silicium [49], en irradiant des feuilles de quelques mg cm^{-2} par les hélions ^3He .

Intéressante pour analyser des échantillons très minces cette méthode ne peut se généraliser. En effet, l'amincissement systématique des échantillons avant analyse indépendamment des problèmes technologiques soulevés se traduira toujours par une contamination des faces irradiées. Si l'on veut déterminer des traces infimes on est obligé de procéder après irradiation à un décapage profond, de plusieurs microns par face au moins. Cette opération est toujours très délicate à effectuer sur des échantillons minces.

Cette méthode absolue d'étalonnage introduit donc en définitive des complications expérimentales qui, sans être insurmontables dans tous les cas, lui enlèvent une grande part de son intérêt. D'ailleurs sauf pour les analyses superficielles, il est le plus souvent indispensable de connaître la teneur de l'impureté recherchée dans une épaisseur d'échantillon convenable, supérieure à quelques dizaines de microns, en fait, la plus grande possible. Ce qui, nécessite l'irradiation d'échantillon épais.

b) - Méthode de l'étalon interne
.....

Elle fut utilisée pour la première fois par Ph. ALBERT, G. CHAUDRON et P. SUE [5] en 1953 qui déterminèrent le carbone dans le fer par activation par les deutons. Le moniteur de flux est l'échantillon lui-même. Cette méthode simple dans son principe est toutefois soumise aux conditions suivantes :

- les périodes des isotopes produits à partir de la matrice et de l'impureté recherchée doivent être aussi voisines que possible, afin d'intégrer de la même façon les variations d'intensité de faisceau éventuelles en cours d'irradiation.

- les fonctions d'excitation doivent avoir des formes semblables. Le mieux serait d'ailleurs, qu'elles soient sensiblement superposables. De sorte, qu'une variation d'énergie d'une irradiation à l'autre, affecte identiquement les activités des deux isotopes. Si cette condition n'est pas satisfaite, le rapport d'étalonnage préalablement établi en activant des échantillons à teneur connue, n'est plus le même, et le dosage est faussé proportionnellement .

- en vue de déterminer le rapport d'étalonnage il est nécessaire d'avoir des échantillons à teneurs connues, très homogènes, ce qui n'est pas toujours très facile à réaliser.

Les auteurs précités ont obtenu de très bons résultats et montré que dans leur cas, la méthode est parfaitement valable. Elle fut aussi utilisée par G.I. ALEKSANDROVA et al. [50] , T. NOZAKI et al. [11] [51] , qui dosèrent l'oxygène dans le silicium, respectivement par

activation avec les hélions 3 et les particules α , en prenant le phosphore 32 comme isotope de monitoring.

Bien que tous ces auteurs aient obtenu des résultats encourageants, il nous semble que cette méthode ne puisse pas faire l'objet d'une application générale. Son domaine d'utilisation reste limité à des cas pour lesquels les conditions énumérées ci-dessus sont satisfaisantes.

c) - Méthode de la section efficace moyenne
.....

Elle a été proposée par E. RICCI et R. L. HAHN [52] en 1965. Si l'on considère un échantillon très mince d'épaisseur e g cm⁻², contenant n atomes par g de l'espèce à déterminer, l'activité à saturation est

$$A = \phi n \sigma e \quad (1)$$

A nombre de désintégrations par seconde

ϕ nombre de particules chargées par seconde

σ section efficace de la réaction nucléaire

Dans l'expression (1) on suppose que σ est constante c'est à dire que l'échantillon est suffisamment mince pour que l'on puisse négliger la dégradation en énergie des particules chargées. Si son épaisseur est telle que toute l'énergie cinétique est absorbée, la relation (1) devra être remplacée par la suivante

$$A = \phi n \int_0^R \sigma_x dx \quad (2)$$

R parcours des particules chargées dans le matériau irradié

σ_x variation de la section efficace en fonction de la pénétration dans l'échantillon.

On sait que le parcours est défini au moyen de l'équation

$$R = \int_0^R dx = \int_{E_i}^0 \left(\frac{dx}{dE} \right) dE$$

E_i énergie initiale des particules chargées.

En effectuant un changement de variable qui remplace $\overline{\sigma}_x$ par $\overline{\sigma}_E$, variation de la section efficace avec l'énergie des particules chargées, on obtient :

$$\int_0^R \overline{\sigma}_x dx = \int_{E_i}^0 \overline{\sigma}_E \left(\frac{dx}{dE} \right) dE$$

La section efficace moyenne est alors définie au moyen de l'expression

$$\overline{\sigma} = \frac{\int_0^R \overline{\sigma}_x dx}{\int_0^R dx} = \frac{\int_{E_i}^0 \overline{\sigma}_E \left(\frac{dx}{dE} \right) dE}{\int_{E_i}^0 \left(\frac{dx}{dE} \right) dE}$$

En irradiant un échantillon épais (supérieur au parcours) la relation (2) s'écrit

$$A = \phi n \overline{\sigma} R \quad (3)$$

D'autre part, le pouvoir de ralentissement peut s'exprimer au moyen de la relation

$$\frac{dE}{dx} = - \frac{K}{E} \text{Log}_e \frac{E}{I_z}$$

K est une constante

E énergie de la particule chargée

I_z potentiel moyen d'ionisation des atomes du milieu irradié

Ainsi, en remplaçant dans la définition de $\overline{\sigma}$, $\frac{dE}{dx}$ par la relation précédente, on a

$$\overline{\sigma} = \frac{\int_{E_i}^0 \overline{\sigma}_E E \left[K \text{Log}_e E/I_z \right]^{-1} dE}{\int_{E_i}^0 E \left[K \text{Log}_e E/I_z \right]^{-1} dE}$$

Le terme logarithmique variant lentement avec l'énergie et I_z étant constant pour un milieu donné on a

$$K \log_e E/I_z \approx \text{constante}$$

soit

$$\bar{\sigma} \approx \frac{\int_{E_i}^0 \sigma_E E dE}{\int_{E_i}^0 E dE}$$

Dans la limite où l'hypothèse précédente est valable, $\bar{\sigma}$ est donc indépendant du matériau irradié et ne dépend que de la fonction d'excitation.

En fait, les auteurs précités ont calculé que $\bar{\sigma}$ varie de moins de 8% pour des matériaux de Z compris entre 4 et 95 [52], dans le cas de la détermination de l'oxygène au moyen de la réaction $^{16}\text{O} (^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$.

Cette méthode est très intéressante pour prévoir, par le calcul, les sensibilités possibles et l'importance relative des réactions nucléaires compétitives. Les fonctions d'excitation des réactions nucléaires considérées doivent naturellement être connues.

Quant à son application pour des dosages précis, des expériences récentes, effectuées par J. N. BARRANDON, J. L. DEBRUN Ph. ALBERT [53] d'une part, J. GIROUX, J. P. THOMAS, M. D. TRAN et J. TOUSSET [54] d'autre part, montrent que la courbe d'activation de l'impureté dans l'échantillon, dépend étroitement du spectre en énergie des particules chargées et varie d'une façon très importante d'une position d'irradiation à l'autre. Or, la section efficace moyenne $\bar{\sigma}$ ne peut évidemment être utilisée pour calculer la teneur que dans la mesure où la courbe d'activation est représentative de la fonction d'excitation, intégrée pour déterminer $\bar{\sigma}$. Il y a donc là un risque d'incertitude qui ne peut être négligé.

d) - Méthode de l'épaisseur équivalente
.....

Nous l'avons proposée dès 1964 [55]. C'est une méthode entièrement expérimentale, dans laquelle on tient par conséquent compte implicitement de l'influence du spectre des particules chargées.

Son principe est le suivant :

- on détermine la courbe d'activation, relative au dosage d'un élément dans un milieu donné, en irradiant un empilement (Cf. figure 63) comprenant dans l'ordre, sur le trajet des particules chargées, un moniteur très mince contenant l'élément à doser, un écran d'épaisseur variable du matériau à analyser, un second moniteur mince identique au précédent. Pour récupérer les noyaux de recul, chacun des deux moniteurs pourra se composer de plusieurs feuilles, dont on ne mesurera que celles pour lesquelles il y a eu compensation de l'effet de recul. Le moniteur d'entrée sert de référence. Les activités des moniteurs de sortie pour les différentes épaisseurs sont normalisées par rapport à la sienne. On peut donc construire une courbe représentant en fonction de l'épaisseur du matériau, l'activation relative du moniteur de sortie. Cette courbe expérimentale donne en fait, les activités induites sur l'élément à doser dans les tranches successives de l'échantillon.

- l'intégration de cette courbe d'activation permet alors de définir une épaisseur équivalente e , telle que l'activation soit uniforme jusqu'à l'épaisseur e et égale à celle produite par les particules chargées d'énergie égale à l'énergie incidente E_1 , et nulle au delà.

Si σ_0 est la section efficace pour la réaction à E_1 , σ_x celle relative à l'énergie des particules après une profondeur de pénétration x , on a par définition :

$$e \phi_0 \sigma_0 = \int_0^R \phi_x \sigma_x dx$$

ϕ_0 flux de particules à l'entrée de l'échantillon

ϕ_x flux de particules à la profondeur x

Pratiquement $\phi_x \approx \phi_0$, sauf si l'on irradie des matériaux pour lesquels il y a une très forte absorption par réactions nucléaires (σ de la matrice, très grand). De sorte que l'on peut écrire

$$e = \frac{\int_0^R \sigma_x dx}{\sigma_0}$$

L'activité induite dans l'impureté contenue dans l'échantillon d'épaisseur supérieure au parcours est calculable par la formule :

$$A = \phi n \sigma_0 e$$

ϕ nombre de particules chargées par seconde

n nombre d'atomes de l'espèce à doser par g de l'échantillon

σ_0 section efficace de la réaction pour l'énergie initiale E_i

e épaisseur équivalente pour les particules chargées d'énergie E_i correspondant à l'impureté et au matériau considérés.

Pour effectuer un dosage, on place devant l'échantillon un étalon mince, d'épaisseur ε g cm⁻², contenant n' atomes par g, de l'élément à déterminer. L'activité qui, y sera induite, se calcule au moyen de la formule,

$$A'_{\text{ét}} = \phi n' \sigma_0 \varepsilon$$

tandis que pour l'échantillon épais on a

$$A'_{\text{éch}} = \phi n \sigma_0 e$$

Finalement le nombre d'atomes n contenus dans 1 g du matériau analysé est obtenu par la relation

$$n = \frac{A'_{\text{éch}}}{A'_{\text{ét}}} \cdot \frac{\varepsilon}{e} \cdot n'$$

En utilisant cette méthode semi-absolue, on supprime les incertitudes imputables, à la mesure précise de ϕ toujours très délicate et à la valeur de σ_0 à introduire dans les calculs.

La seule limitation de cette méthode pourrait provenir du fait qu'il faut disposer de feuilles très minces, contenant une proportion parfaitement connue de l'impureté à doser, afin de pouvoir déterminer avec précision la courbe d'activation d'abord et de les utiliser lors des dosages ensuite comme étalon. Or, dès que l'on atteint des intensités de faisceau de quelques μA , l'expérience montre que des feuilles minces contenant C, N, O et F par exemple, résistent difficilement à des irradiations de longue durée. On peut remplacer ces étalons fragiles par des feuilles métalliques minces, particulièrement résistantes au faisceau (Cu, Ni, Au) et relier leur activation à celle de l'impureté recherchée en effectuant des étalonnages secondaires entre les deux types de moniteurs minces, à faible intensité. Dans l'expression précédente donnant n, n' sera simplement remplacé par un autre terme n'' qui tient compte de l'activation relative des atomes du métal ci-dessus. On peut aussi mesurer d'une façon relative les valeurs de ϕ en irradiant successivement l'étalon mince dans un flux ϕ_1 et l'échantillon dans un flux $\phi_2 \gg \phi_1$. L'émission secondaire responsable de l'incertitude dans ces mesures absolues des flux étant relativement la même dans les deux irradiations à ϕ_1 et ϕ_2 , son influence est éliminée dans le calcul de n au moyen de la relation

$$n = \frac{A_{\text{éch}}}{\phi_2} \cdot \frac{\phi_1}{A_{\text{ét}}} \cdot \frac{\epsilon}{e} \cdot n'$$

La méthode de l'épaisseur équivalente peut donc être généralisée et appliquée à tous les cas, en utilisant les artifices précédents.

D'autre part, on peut facilement relier l'épaisseur équivalente à la section efficace moyenne $\bar{\sigma}$.

En effet, on a

$$\bar{\sigma} = \frac{\int_0^R \sigma_x dx}{\int_0^R dx} \quad e = \frac{\int_0^R \sigma_x dx}{\sigma_0}$$

donc

$$\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0} = \frac{e}{R}$$

Or, pour une réaction nucléaire considérée $\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}$ est indépendant du matériau analysé, dans la limite où l'hypothèse de RICCI et HAHN, $\bar{\sigma}$ constant est vérifiée. Par conséquent pour une même impureté déterminée dans deux milieux différents 1 et 2 on a :

$$\frac{e_1}{R_1} = \frac{e_2}{R_2}$$

Donc, il suffira de déterminer l'épaisseur équivalente relative à un matériau pour connaître celle de tout autre à partir de la relation ci-dessus.

Dans leur publication, N. CHEVARIER, J. GIROUX, M. D. TRAN et J. TOUSSET [56] montrent que la formule précédente est valable même s'il y a un "straggling" dû à des écrans interposés pour abaisser l'énergie des particules chargées.

Ces auteurs définissent en effet une épaisseur équivalente moyenne

$$\bar{e} = \frac{\sum I_j \sigma_{0j} e_j}{\sum I_j \sigma_{0j}}$$

I_j intensité des particules d'énergie E_j

e_j épaisseur équivalente pour des particules d'énergie E_j

σ_{0j} section efficace à E_j

et démontrent que l'on peut écrire

$$\frac{\bar{e}_1}{\bar{e}_2} = \frac{e_1}{e_2} = \frac{R_{10}}{R_{20}}$$

en admettant pour expressions des parcours des relations approchées du type $R_{1j} = k_1 (E_j)^m$

R_{10} et R_{20} représentent les parcours dans les deux matériaux 1 et 2, pour l'énergie E_0 la plus probable de la distribution,

Il semblerait donc que cette méthode de l'épaisseur équivalente, d'une part, peut faire l'objet d'une application très générale, d'autre part, est plus sûre que la précédente, puisque l'on tient compte implicitement lors de sa détermination des caractéristiques dispersives du faisceau.

C'est ainsi que H. L. ROOK et E. A. SCHWEIKERT [57] ont déterminé avec une très grande précision les courbes d'activation des éléments légers O_2 et C, irradiés par les p, d et particules α , en vue de calculer les épaisseurs équivalentes pour un grand nombre de matériaux en utilisant les formules de transformation, parcours - énergie.

e) - Méthode comparative
.....

C'est une méthode relative. Elle consiste à irradier l'échantillon avec un moniteur de flux mince à une énergie bien définie. Puis, d'irradier ensuite un étalon épais avec le même type de moniteur. Son mérite est d'être extrêmement simple. Par contre il faut supposer que d'une irradiation à la suivante, la distribution en énergie du faisceau, n'a absolument pas bougé.

Comme moniteur de flux on peut prendre des feuilles minces de Cu, Ni, Au etc... qui résisteront mieux à l'irradiation que des composés stœchiométriques contenant B, C, N, O et F.

Soit R , le parcours des particules chargées dans l'étalon épais contenant n_1 atomes par g de l'élément à doser. R_2 le parcours dans l'échantillon dont on veut déterminer le nombre d'atomes n_x de l'espèce précédente par g.

D'après les relations ci-dessus on a respectivement

$$A_1 = \phi_1 n_1 \sigma_0 e_1$$

$$A_x = \phi_2 n_x \sigma_0 e_2$$

soit

$$n_x = \frac{A_x \phi_1 e_1}{A_1 \phi_2 e_2} n_1$$

1. The first of the three is the *... ..*
2. The second is the *... ..*
3. The third is the *... ..*

... ..

The first of the three is the *... ..*
The second is the *... ..*
The third is the *... ..*

... ..

... ..

The first of the three is the *... ..*
The second is the *... ..*
The third is the *... ..*

... ..

The first of the three is the *... ..*
The second is the *... ..*
The third is the *... ..*

Comme étalon de Be, B, C, N, O et F on a eu recours à divers matériaux dans lesquels les parcours, respectivement des deutons, protons, α et ^3He sont sensiblement les mêmes et légèrement inférieurs à celui dans l'aluminium, comme le montrent les valeurs du tableau X déduites de [42]. Pour les composés on a appliqué la règle de BRAGG [43]. On ne donne les parcours que pour une énergie par particule. D'après [42], l'écart relatif entre les divers parcours, reste approximativement le même, pour la gamme des énergies, dont il est question dans le présent travail.

Les courbes d'activation relatives à deux éléments, contenus dans deux milieux différents de ceux du tableau X peuvent donc être comparées entre-elles. C'est à dire que l'on peut admettre qu'elles concernent les deux impuretés supposées contenues dans un même matériau, pour lequel le parcours des particules chargées est légèrement inférieur à celui dans l'aluminium.

Pour calculer les sensibilités de détection, nous adoptons arbitrairement comme milieu de référence, l'aluminium. Les valeurs du tableau X montrent qu'en réalité, les parcours dans ce métal sont déjà supérieurs à ceux dans les matériaux servant d'étalons, de 10 à 15%. Mais nous estimons que les incertitudes expérimentales diverses sont du même ordre de grandeur. De sorte qu'il nous semble légitime de prendre ce métal. D'autant plus, qu'il s'agit d'indiquer des limites de détection pour lesquelles l'existence à priori d'une incertitude de l'ordre de grandeur ci-dessus est secondaire.

Pour déterminer la limite de détection relative à un autre métal, ou composé, on pourra utiliser les expressions simples vues précédemment à propos des méthodes d'étalonnages.

En effet, on avait

$$A = \phi n \sigma_0 e$$

A activité induite

ϕ flux de particules

n nombre d'atomes par g d'échantillon de l'élément à doser

TABLEAU X

Parcours en g cm^{-2} , des p, d, ^3He et α dans
les étalons utilisés et quelques métaux, d'après [42].

Matériau	p 15 MeV	d 20 MeV	^3He 20 MeV	α 40 MeV
Be	0,300	0,289	0,0525	0,145
H_3BO_3	0,276	0,274	0,049	0,135
BeO		0,292		
C	0,286	0,276	0,0506	0,139
Al N	0,324	0,318	0,0586	0,160
Si O ₂	0,317		0,0567	0,156
Li F	0,318		0,0565	0,154
Al	0,344	0,338	0,0630	0,170
Cu	0,437	0,438	0,0837	0,220
Ag	0,522	0,532	0,103	0,267
Ta	0,647	0,672	0,133	0,348
U	0,732	0,767	0,153	0,383

σ_0 section efficace de la réaction nucléaire pour l'énergie maximale à l'entrée dans l'échantillon

e épaisseur équivalente relative au matériau analysé

On avait vu que l'on pouvait écrire aussi que

$$\frac{e_1}{e_2} = \frac{R_1}{R_2} \quad \text{soit}$$

$$e_x = R_x \frac{e_{al}}{R_{al}} \quad \text{d'où}$$

$$A_x = \phi n \sigma_0 \frac{e_{al}}{R_{al}} R_x$$

C'est à dire que, pour une même teneur atomique n , l'activité obtenue à partir de l'impureté pour un matériau x par rapport à celle relative à l'aluminium est $\frac{R_x}{R_{al}}$ fois plus grande. La limite de détection est donc abaissée en proportion.

D'après les valeurs de parcours du tableau X, on devrait augmenter la sensibilité d'un facteur 2 environ en passant de l'aluminium à l'uranium.

b) - Courbes d'activation intégrée de B, C, N, O et F par les protons.
.....

L'énergie maximale des protons était de 15 MeV. Comme moniteur de flux on a pris des disques de mica d'épaisseurs 1,5 à 2 mg cm^{-2} , enveloppés des deux faces par une feuille mince d'aluminium d'épaisseur 25μ , afin d'éviter la perte des noyaux de recul. Un diaphragme de surface 1 cm^2 a été placé devant l'ensemble pour limiter l'aire d'irradiation. L'activité de référence est celle de l'azote 13 produit par la réaction $^{16}\text{O} (p, \alpha) ^{13}\text{N}$ sur l'oxygène du mica. Une irradiation d'une minute dans un faisceau d'intensité $1 \mu \text{ A}$ mesurée au porte échantillon correspond à 10^7 dpm pour 1 mg cm^{-2} de mica. D'après [58], à 15 MeV la section efficace de la réaction $^{16}\text{O} (p, \alpha) ^{13}\text{N}$ est de 25 mb. En utilisant cette valeur on trouve pour l'intensité vraie du faisceau $0,85 \mu \text{ A}$.

TABLEAU XI

Réactions nucléaires relatives aux courbes d'activation
intégrée de B, C, N, O et F par les protons.

Elément	Matériau irradié	Réaction nucléaire	Seuil en MeV d'après [59]	Période de l'isotope produit
B	H ₃ B O ₃	$^{11}\text{B} (p, n) ^{11}\text{C}$	3, 02	20, 3 min.
C	Graphite	$^{12}\text{C} (p, \gamma) ^{13}\text{N}$	Q > 0	9, 96 "
		+ $^{13}\text{C} (p, n) ^{13}\text{N}$	3, 23	9, 96 "
N	Al N	$^{14}\text{N} (p, \alpha) ^{11}\text{C}$	3, 12	20, 3 "
O	Si O ₂	$^{16}\text{O} (p, \alpha) ^{13}\text{N}$	5, 54	9, 96 "
		$^{18}\text{O} (p, n) ^{18}\text{F}$	2, 59	109, 7 "
F	Li F	$^{19}\text{F} (p, d) ^{18}\text{F}$	8, 64	109, 7 "
		+ $^{19}\text{F} (p, pn) ^{18}\text{F}$	11	109, 7 "

Les courbes d'activation déterminées sont celles, relatives, aux réactions nucléaires du tableau XI. Elles concernent toutes des irradiations de 1 minute, dans un faisceau d'intensité égale à la valeur précédente.

En ordonnée sont portées les activités mesurées, en dpm pour une teneur massique de 10^{-6} dans un matériau identique au point de vue parcours à l'aluminium. Les résultats concernent les activités induites, existantes, à la fin de l'irradiation. Les courbes obtenues dans les conditions expérimentales précitées sont celles des figures 65 à 68.

c) - Courbes d'activation intégrée de B, C, N et O par les deutons.
.....

Pour ces expériences, on a utilisé le synchrocyclotron de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon. L'énergie nominale des deutons est de 27 MeV. Le moniteur de flux était constitué par une feuille d'aluminium d'épaisseur 100μ . On mesurait l'activité en sodium 24 provenant de la réaction $^{27}\text{Al} (d, p\alpha) ^{24}\text{Na}$ dont le seuil expérimental est de $11 \pm 0,5$ MeV [60]. On sait que les deutons sont réputés produire d'importants flux de neutrons. Le sodium 24 pourrait donc aussi provenir de la réaction $^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$. Pour être certain que cette activation secondaire ne perturbe pas trop le monitoring du faisceau incident, nous avons irradié un feuilleté d'aluminium, de 100μ d'épaisseur chacune. Les activités en sodium 24, en fonction de la position respective des feuilles sont représentées graphiquement figure 69. En superposant une échelle en énergie on constate qu'il s'agit bien à quelques pour cent près de l'activité provenant de la réaction $^{27}\text{Al} (d, p\alpha) ^{24}\text{Na}$ que l'on mesure sur le moniteur placé devant les étalons.

L'intensité du faisceau de deutons a été mesurée dans l'accélérateur, juste avant l'extraction. Au moment de nos expériences on ne pouvait pas encore effectuer une mesure au niveau de l'échantillon. Il n'est donc pas exclu que la valeur de l'intensité de faisceau que nous indiquons et qui a été déduite de la mesure interne en tenant compte du rendement d'extraction ne soit qu'approximative. Il nous a été impossible en effet de calculer cette intensité à partir de l'activité du moniteur,

TABLEAU XII

Réactions nucléaires relatives aux courbes d'activation
intégrée de B, C, N et O par les deutons

Elément	Matériau irradié	Réaction nucléaire	Seuil en MeV d'après [62]	Période de l'isotope produit
B	$\text{H}_3\text{B O}_3$	$^{10}\text{B} (\text{d}, \text{n}) ^{11}\text{C}$	$Q > 0$	20,3 min.
		+ $^{11}\text{B} (\text{d}, 2\text{n}) ^{11}\text{C}$	5,90	20,3 "
C	Graphite	$^{12}\text{C} (\text{d}, \text{n}) ^{13}\text{N}$	0,33	9,96 "
N	Al N	$^{14}\text{N} (\text{d}, \alpha\text{n}) ^{11}\text{C}$	5,88	20,3 "
	"	$^{14}\text{N} (\text{d}, \text{n}) ^{15}\text{O}$	$Q > 0$	2,03 "
O	Be O	$^{16}\text{O} (\text{d}, \text{t}) ^{15}\text{O}$	10,58	2,03 "
	"	$^{16}\text{O} (\text{d}, \alpha\text{n}) ^{13}\text{N}$	8,37	9,96 "

compte tenu des difficultés d'étalonnage absolu des appareils que nous avons rencontrées lors de cette série d'expériences.

De toute façon, ces courbes d'activation sont intéressantes. D'une part, elles donnent un ordre de grandeur des activités induites, donc des sensibilités de détection des impuretés, possibles. D'autre part, elles montrent, comme nous le verrons plus loin, l'influence de réactions nucléaires compétitives sur des éléments voisins de celui à doser. En effet, bien que la valeur absolue de l'intensité de faisceau soit erronée à priori, tous les résultats ayant été normalisés par rapport à une activité de référence du moniteur, leur inter comparaison ne soulève aucune difficulté.

Les courbes d'activation intégrée déterminées sont celles des figures 70 à 72. Elles concernent les réactions nucléaires du tableau XII. La durée d'irradiation est de 1 minute. L'intensité du faisceau, environ 1 μ A.

La courbe d'activation de la réaction $^{16}\text{O}(\text{d}, \text{t})^{15}\text{O}$ a été obtenue en irradiant des étalons de Be O réputés purs. Il n'est pas impossible, bien que cela semble peu probable, que l'activité en ^{15}O provient en partie de l'azote, contenu en tant qu'impureté dans le matériau. Néanmoins, elle permet de fixer une limite supérieure, de son influence en tant que réaction nucléaire compétitive, dans les dosages d'azote.

Dans une récente publication, N. N. KRASNOV et al. [61] donnent des courbes de rendement pour la production d'isotopes, relatives aux mêmes éléments et mêmes particules chargées que ceux de notre travail. En comparant les activations, au moyen des protons et des deutons publiées par ces auteurs et les nôtres, on s'aperçoit que pour des deutons de 15 MeV il y a un bon accord relatif. De sorte que l'intensité du faisceau de deutons que nous indiquons est très voisine de la réalité.

d) - Courbes d'activation intégrée de Be, B, C, N, O et F par les ^3He .
.....

On a utilisé le même type de moniteur que pour les protons. L'énergie initiale des hélions 3 était de 22 MeV. Comme activité de référence on a pris 10^6 dpm pour 1 mg cm^{-2} de mica de ^{18}F produit au moyen

TABLEAU XIII

Réactions nucléaires relatives aux courbes d'activation
intégrée de Be, B, C, N, O et F par les ^3He

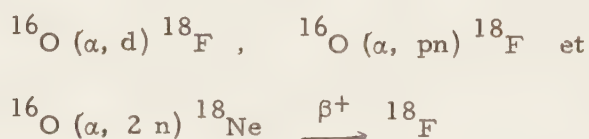
Elément	Matériau irradié	Réaction nucléaire	Seuil en MeV d'après [63]	Période de l'isotope produit
Be	Be	$^9\text{Be} (^3\text{He}, n) ^{11}\text{C}$	$Q > 0$	20, 3 min.
B	H_3BO_3	$^{10}\text{B} (^3\text{He}, d) ^{11}\text{C}$	$Q > 0$	20, 3 "
		+ $^{11}\text{B} (^3\text{He}, t) ^{11}\text{C}$	2, 54	20, 3 "
C	Graphite	$^{12}\text{C} (^3\text{He}, \alpha) ^{11}\text{C}$	$Q > 0$	20, 3 "
N	Al N	$^{14}\text{N} (^3\text{He}, \alpha) ^{13}\text{N}$	$Q > 0$	9, 96 "
O	SiO_2	$^{16}\text{O} (^3\text{He}, p) ^{18}\text{F}$	$Q > 0$	109, 7 "
		+ $^{16}\text{O} (^3\text{He}, n) ^{18}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} ^{18}\text{F}$	3, 80	109, 7 "
F	Li F	$^{19}\text{F} (^3\text{He}, \alpha) ^{18}\text{F}$	$Q > 0$	109, 7 "

des réactions $^{16}\text{O} (^3\text{He}, p) ^{18}\text{F}$ et $^{16}\text{O} (^3\text{He}, n) ^{18}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} ^{18}\text{F}$. L'aire d'irradiation est de 1 cm^2 . L'intensité de faisceau correspondante, pour une durée d'irradiation de 1 minute, mesurée sur le porte échantillon est de $2,3\mu\text{A}$. Dans la littérature, la section efficace totale de production de fluor 18 à partir de l'oxygène, imputable aux réactions précédentes est $\sigma = 50\text{ mb}$ à 21 MeV [12] (l'énergie moyenne des ^3He dans le mica est en effet de 1 MeV environ, inférieure à l'énergie initiale, compte tenu du freinage dans la première feuille d'aluminium de 25μ). L'activité de référence précédente, correspond à une intensité calculée de $0,94\mu\text{A}$. Les courbes d'activation déterminées sont celles des figures 73 à 75. Le tableau XIII contient les principales caractéristiques les concernant.

Comme précédemment pour les deutons, ces courbes représentent en fonction de l'énergie, les activités que l'on obtient à la fin d'une irradiation de 1 minute, dans un faisceau d'intensité voisine de $1\mu\text{A}$, à partir de l'élément considéré, supposé à une teneur massique de 10^{-6} dans un échantillon pour lequel le parcours des ^3He est voisin de celui dans l'aluminium.

e) - Courbes d'activation intégrée de Be, B, C, N, O et F par
.....
les particules α .
.....

Le moniteur est ici encore le mica. L'activité de référence 10^6 dpm pour 1 mg de mica par cm^2 d'aire d'irradiation. C'est à dire le même que ci-dessus. L'énergie des α 43 MeV . Le moniteur est irradié à 42 MeV environ. Pour cette énergie, la section efficace de production de ^{18}F au moyen des réactions



est voisine de 220 mb [51] . L'intensité de faisceau calculée correspondant à l'activité de référence précédente est de $0,25\mu\text{A}$. La mesure directe sur le porte échantillon indiquait $1,5 \pm 0,5\mu\text{A}$. Mais dans ce cas,

TABLEAU XIV

Réactions nucléaires relatives aux courbes d'activation
intégrée de Be, B, C, N, O et F par les particules α .

Elément	Matériau irradié	Réaction Nucléaire	Seuil en MeV d'après [64]	Période de l'isotope produit
Be	Be	${}^9\text{Be} (\alpha, 2n) {}^{11}\text{C}$	18, 8	20, 3 min.
B	$\text{H}_3\text{B O}_3$	${}^{10}\text{B} (\alpha, n) {}^{13}\text{N}$ + ${}^{11}\text{B} (\alpha, 2n) {}^{13}\text{N}$	$Q > 0$ 14, 2	9, 96 " 9, 96 "
C	Graphite	${}^{12}\text{C} (\alpha, \alpha n) {}^{11}\text{C}$ ${}^{12}\text{C} (\alpha, n) {}^{15}\text{O}$	25 11, 3	20, 3 " 2, 03 "
N	Al N	${}^{14}\text{N} (\alpha, \alpha n) {}^{13}\text{N}$	13, 6	9, 96 "
O	Si O_2	${}^{16}\text{O} (\alpha, d) {}^{18}\text{F}$ + ${}^{16}\text{O} (\alpha, pn) {}^{18}\text{F}$ + ${}^{16}\text{O} (\alpha, 2n) {}^{18}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} {}^{18}\text{F}$	20, 4 23, 2 29, 7	109, 7 " 109, 7 " 109, 7 "
F	Li F	${}^{19}\text{F} (\alpha, \alpha n) {}^{18}\text{F}$	12, 6	109, 7 "

comme dans ceux relatifs aux protons et aux ^3He , le porte échantillon était simplement relié à un galvanomètre de mesure. Il ne comportait aucun système captant les électrons secondaires. Une telle divergence de résultats n'a donc rien de surprenant à priori.

Les réactions nucléaires intervenant dans la détermination de ces courbes d'activation (Cf. figures 76 à 79) sont celles du tableau XIV.

Ces courbes, comme pour les autres 3 particules, donnent les activités obtenues à la fin de l'irradiation, de durée une minute, à partir d'éléments supposés contenus à une teneur massique de 10^{-6} dans un matériau pour lequel le parcours des particules α est voisin de celui dans l'aluminium. L'intensité du faisceau calculée étant de 0,25 μA .

f) - Autres courbes d'activation possibles, relatives à des
.....
réactions nucléaires produisant les mêmes isotopes que précédemment
.....
par irradiation avec des p, d, ^3He et α .
.....

Elles sont nombreuses. En fait, elles interviennent comme nous le verrons plus loin, le plus souvent, en tant que réactions nucléaires compétitives, lors de la détermination de l'un des éléments légers ci-dessus mentionnés.

Quelques unes, les plus importantes certainement, étudiées par d'autres auteurs, sont indiquées dans le tableau XV.

Toutes les possibilités de réactions pour obtenir un isotope à partir d'un élément irradié par une particule ne sont pas indiquées. Principalement en ce qui concerne la production de ^{18}F et de ^{11}C . On s'est limité à une seule dans chaque cas. On peut soupçonner en effet, que des réactions de fission sur Na, Mg et Al par exemple, contribuent elles aussi à la formation de fluor 18.

TABLEAU XV

Réactions nucléaires concernant d'autres courbes d'activation
possibles, étudiées par divers auteurs, relatives à la production
de ^{11}C , ^{13}N et ^{18}F , par irradiation avec des p, d, ^3He et α .

Elément activé	Nature de la particule chargée	Réaction nucléaire	Seuil en MeV	Références
N	p	$^{14}\text{N}(\text{p}, \text{pn})^{13}\text{N}$ +	11, 3	[61]
	$E_{\text{max}} \leq 15 \text{ MeV}$	$^{14}\text{N}(\text{p}, \text{d})^{13}\text{N}$	8, 9	
C	d	$^{12}\text{C}(\text{d}, \text{t})^{11}\text{C}$	14, 5	[61]
N	$E_{\text{max}} \leq 20 \text{ MeV}$	$^{14}\text{N}(\text{d}, \text{t})^{13}\text{N}$	4, 9	[61]
O		$^{18}\text{O}(\text{d}, 2\text{n})^{18}\text{F}$ +	5, 2	[65]
		$^{17}\text{O}(\text{d}, \text{n})^{18}\text{F}$	$Q > 0$	
F		$^{19}\text{F}(\text{d}, \text{t})^{18}\text{F}$	4, 6	[65]
B	^3He	$^{11}\text{B}(^3\text{He}, \text{n})^{13}\text{N}$	$Q > 0$	[61]
C	$E_{\text{max}} \leq 20 \text{ MeV}$	$^{12}\text{C}(^3\text{He}, \text{pn})^{13}\text{N}$ +	7, 2	[61]
		$^{12}\text{C}(^3\text{He}, \text{d})^{13}\text{N}$	4, 4	
N		$^{14}\text{N}(^3\text{He}, \alpha\text{d})^{11}\text{C}$	10, 2	[61]
O		$^{16}\text{O}(^3\text{He}, 2\alpha)^{11}\text{C}$	6, 3	[38] [61] [66]
Na		$^{23}\text{Na}(^3\text{He}, 2\alpha)^{18}\text{F}$	0, 37	[61]
Mg		$^{24}\text{Mg}(^3\text{He}, 2\alpha\text{p})^{18}\text{F}$	13, 5	[61]
Al		$^{27}\text{Al}(^3\text{He}, 3\alpha)^{18}\text{F}$	11, 5	[61]
B	α	$^{10}\text{B}(\alpha, \text{t})^{11}\text{C}$ +	15, 6	[61]
	$E_{\text{max}} \leq 42 \text{ MeV}$	$^{11}\text{B}(\alpha, \text{tn})^{11}\text{C}$	30, 8	
C		$^{12}\text{C}(\alpha, \text{t})^{13}\text{N}$	23, 8	[61]
N		$^{14}\text{N}(\alpha, \alpha\text{t})^{11}\text{C}$	29, 2	[61]
		$^{15}\text{N}(\alpha, \text{n})^{18}\text{F}$	8, 1	[61]
O		$^{16}\text{O}(\alpha, 2\alpha\text{n})^{11}\text{C}$	32, 5	[38] [66]
Na		$^{23}\text{Na}(\alpha, 2\alpha\text{n})^{18}\text{F}$	25	[61]
Al		$^{27}\text{Al}(\alpha, 3\alpha\text{n})^{18}\text{F}$	35, 5	[38] [57] [66]

IV - Possibilités offertes par l'activation avec les p, d, ^3He et α
pour déterminer de très faibles teneurs de Be, B, C, N, O et F.

a) - Sensibilités de détection
.....

D'après ce qui précède, il ressort, que l'on peut produire un même isotope actif, au moyen de plusieurs réactions nucléaires avec la même particule chargée, activant des éléments voisins. Pour effectuer pratiquement un dosage il faut donc se placer dans des conditions expérimentales telles, que ces réactions nucléaires compétitives n'introduisent que des erreurs de second ordre au plus. Le choix de la particule chargée et de son énergie, dépend par conséquent non seulement de la performance souhaitée mais aussi du milieu dans lequel l'impureté doit être dosée. Aussi est-il intéressant de définir d'abord des sensibilités de détection d'une façon intrinsèque sans tenir compte des interférences éventuelles, afin de mettre en évidence les possibilités potentielles de chacune des quatre particules pour déterminer les éléments légers ci-dessus.

On les a calculées à partir des courbes d'activation, en prenant comme critère, 1000 dpm à la fin d'une irradiation de durée une période avec un faisceau d'intensité $10\ \mu\text{A}$. Le tableau XVI contient les valeurs ainsi obtenues exprimées en 10^{-9} g/g (ppb massique). On suppose de plus, que l'impureté à doser se trouve dans un milieu dans lequel le parcours des particules chargées est voisin de celui dans l'aluminium. En III - a, nous avons en effet vu que la sensibilité dépend du parcours des particules chargées dans l'échantillon et qu'en passant de l'aluminium à l'uranium on l'améliore d'un facteur 2 environ.

D'autre part, les teneurs minimales déterminables peuvent être beaucoup plus petites que les valeurs du tableau XVI, calculées d'après une activité de référence choisie arbitrairement. On avait déjà signalé à propos de l'activation avec les photons γ , que les opérations de séparations chimiques, les performances des appareils de comptage, jouent un rôle important dans les sensibilités pratiques.

TABLEAU XVI

Sensibilités de détection de Be, B, C, N, O et F dans l'aluminium, en 10^{-9} g/g (ppb massique)
par activation avec des p, d, ^3He et α , en prenant comme critère, 1000 dpm à la fin d'une
irradiation pendant une période du radioélément formé, au moyen d'un faisceau d'intensité $10\mu\text{A}$.

Energie et nature de la particule chargée	Elément à doser									
	Be	B		C		N		O		F
Radioélément mesuré		^{11}C		^{13}N		^{11}C		^{13}N	^{18}F	^{18}F
5 MeV		0,92		110		9,2			430	
7,5 "		0,40		40		0,83		8	220	
p 10 "		0,24		27		0,50		3	115	
12,5 "		0,17		22		0,33		1,6	68	8,3
15 "		0,13		18		0,22		1	43	1,6
Radioélément mesuré		^{11}C		^{13}N		^{11}C	^{15}O	^{13}N		
5 MeV		3,5		7			3,3			
10 "		2,1		0,7			0,8			
d 15 "		0,75		0,5		2,7	0,5	14		
20 "		0,15		0,4		0,75	0,055	1,6		
Radioélément mesuré	^{11}C	^{11}C			^{11}C		^{13}N		^{18}F	^{18}F
5 MeV	16,5	44			12		175		17	240
10 "	8,8	8,2			3,6		66		3,7	70
^3He 15 "	5	3			1,5		44		1,7	34
20 "	3,3	1,3			0,85		29		1,1	20
Radioélément mesuré	^{11}C		^{13}N	^{15}O	^{11}C		^{13}N		^{18}F	^{18}F
26 MeV	70		20				12		45	2,9
30 "	17,5		10	5			5,4		6,4	1,1
α 34 "	8		6	3	16		3,2		2,1	0,7
38 "	3,9		3,5	2	4,4		2,2		1	0,5
42 "	2			1,3	1,75		1,7		0,7	0,4

b) - Importance relative des principales réactions nucléaires
.....
compétitives.
.....

Il ne saurait être question de considérer toutes les réactions nucléaires compétitives possibles dont il faudrait tenir compte lors de la détermination d'un élément léger. Leur importance relative dépend en effet de la nature de l'échantillon, de ses éléments constitutants, leur concentration, de la particule chargée et de son énergie initiale.

Dans le tableau XVII, on indique pour chacun des éléments Be, B, C, N, O et F la réaction nucléaire au moyen de laquelle on peut faire un dosage en se limitant à celles ayant fait l'objet de nos expériences et les principales réactions compétitives connues actuellement. D'après les courbes d'activation intégrée que nous avons déterminées et les résultats publiés par les auteurs ayant étudié les rendements de production de ^{11}C , ^{13}N et ^{18}F (Cf. Tableau XV) nous avons pu construire des courbes, représentatives, en fonction de l'énergie de la particule chargée considérée, de l'importance relative de quelques réactions compétitives (Cf. figures 80 à 88).

Ces courbes expriment, en fonction de l'énergie, les variations des rapports de rendement de production d'un même isotope actif à partir de deux éléments. On peut donc en déduire directement l'importance relative de l'interférence d'un ou plusieurs des éléments lors du dosage de celui à partir duquel on obtient le même radioélément.

Dans le tableau XVIII, on donne quelques exemples de teneurs des éléments interférents pour lesquelles on obtient les mêmes activités qu'avec une teneur unitaire de l'élément à doser.

c) - Comparaison de nos résultats avec ceux publiés par d'autres
.....
auteurs.
.....

En ce qui concerne les sensibilités de détection, on ne trouve pratiquement pas dans la littérature, des résultats expérimentaux consécutifs à une étude systématique. Les auteurs indiquent le plus souvent les teneurs minimales dosables avec leurs conditions expérimentales.

TABLEAU XVII

Principales réactions nucléaires compétitives pouvant interférer lors des dosages de Be, B, C, N, O et F par activation avec les p, d, ^3He et α .

Particule chargée utilisée	Elément à doser	Réaction nucléaire	Seuil en MeV	Principales réactions compétitives	Seuil en MeV
P	B	$^{11}\text{B}(\text{p}, \text{n})\ ^{11}\text{C}$	3	$^{14}\text{N}(\text{p}, \alpha)\ ^{11}\text{C}$	3, 1
	C	$^{12}\text{C}(\text{p}, \gamma)\ ^{13}\text{N}$ + $^{13}\text{C}(\text{p}, \text{n})\ ^{13}\text{N}$	Q > 0 3, 2	$^{16}\text{O}(\text{p}, \alpha)\ ^{13}\text{N}$ $^{14}\text{N}(\text{p}, \text{d})\ ^{13}\text{N}$ + $^{14}\text{N}(\text{p}, \text{pn})\ ^{13}\text{N}$	5, 5 8, 9 11, 3
	N	$^{14}\text{N}(\text{p}, \alpha)\ ^{11}\text{C}$	3, 1	$^{11}\text{B}(\text{p}, \text{n})\ ^{11}\text{C}$	3
	O	$^{16}\text{O}(\text{p}, \alpha)\ ^{13}\text{N}$	5, 5	$^{12}\text{C}(\text{p}, \gamma)\ ^{13}\text{N}$ + $^{13}\text{C}(\text{p}, \text{n})\ ^{13}\text{N}$ $^{14}\text{N}(\text{p}, \text{d})\ ^{13}\text{N}$ + $^{14}\text{N}(\text{p}, \text{pn})\ ^{13}\text{N}$	Q > 0 3, 2 8, 9 11, 3
		$^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})\ ^{18}\text{F}$	2, 6	$^{19}\text{F}(\text{p}, \text{d})\ ^{18}\text{F}$ + $^{19}\text{F}(\text{p}, \text{pn})\ ^{18}\text{F}$	8, 6 11
E max $\leq$ 15 MeV					

TABLEAU XVII (Suite)

Particule chargée utilisée	Elément à doser	Réaction nucléaire	Seuil en MeV	Principales réactions compétitives	Seuil en MeV
d E max ≤ 20 MeV	F	$^{19}\text{F}(\text{p}, \text{d})\ ^{18}\text{F}$ + $^{19}\text{F}(\text{p}, \text{pn})\ ^{18}\text{F}$	8, 6 11	$^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})\ ^{18}\text{F}$	2, 6
	B	$^{10}\text{B}(\text{d}, \text{n})\ ^{11}\text{C}$ + $^{11}\text{B}(\text{d}, 2\text{n})\ ^{11}\text{C}$	$Q > 0$ 5, 9	$^{12}\text{C}(\text{d}, \text{t})\ ^{11}\text{C}$ $^{14}\text{N}(\text{d}, \alpha\text{n})\ ^{11}\text{C}$	14, 5 5, 9
	C	$^{12}\text{C}(\text{d}, \text{n})\ ^{13}\text{N}$	0, 3	$^{14}\text{N}(\text{d}, \text{t})\ ^{13}\text{N}$ $^{16}\text{O}(\text{d}, \alpha\text{n})\ ^{13}\text{N}$	4, 9 8, 4
	N	$^{14}\text{N}(\text{d}, \text{n})\ ^{15}\text{O}$ $^{14}\text{N}(\text{d}, \alpha\text{n})\ ^{11}\text{C}$	$Q > 0$ 5, 9	$^{16}\text{O}(\text{d}, \text{t})\ ^{15}\text{O}$ $^{10}\text{B}(\text{d}, \text{n})\ ^{11}\text{C}$ + $^{11}\text{B}(\text{d}, 2\text{n})\ ^{11}\text{C}$ $^{12}\text{C}(\text{d}, \text{t})\ ^{11}\text{C}$	10, 6 $Q > 0$ 5, 9 14, 5
	O	$^{16}\text{O}(\text{d}, \alpha\text{n})\ ^{13}\text{N}$	3, 4	$^{12}\text{C}(\text{d}, \text{n})\ ^{13}\text{N}$ $^{14}\text{N}(\text{d}, \text{t})\ ^{13}\text{N}$	0, 3 4, 9
	Be	$^9\text{Be}(\ ^3\text{He}, \text{n})\ ^{11}\text{C}$	$Q > 0$	$^{10}\text{B}(\ ^3\text{He}, \text{d})\ ^{11}\text{C}$ + $^{11}\text{B}(\ ^3\text{He}, \text{t})\ ^{11}\text{C}$	$Q > 0$ 2, 5

TABLEAU XVII (suite)

Particule chargée utilisée	Elément à doser	Réaction nucléaire	Seuil en MeV	Principales réactions compétitives	Seuil en MeV
${}^3\text{He}$ E max < 20 MeV				${}^{12}\text{C} ({}^3\text{He}, \alpha) {}^{11}\text{C}$ ${}^{14}\text{N} ({}^3\text{He}, \alpha) {}^{11}\text{C}$ ${}^{16}\text{O} ({}^3\text{He}, 2\alpha) {}^{11}\text{C}$	$Q > 0$ 10, 2 6, 3
	B	${}^{10}\text{B} ({}^3\text{He}, d) {}^{11}\text{C}$ + ${}^{11}\text{B} ({}^3\text{He}, t) {}^{11}\text{C}$	$Q > 0$ 2, 5	${}^9\text{Be} ({}^3\text{He}, n) {}^{11}\text{C}$ ${}^{12}\text{C} ({}^3\text{He}, \alpha) {}^{11}\text{C}$ ${}^{14}\text{N} ({}^3\text{He}, \alpha) {}^{11}\text{C}$ ${}^{16}\text{O} ({}^3\text{He}, 2\alpha) {}^{11}\text{C}$	$Q > 0$ $Q > 0$ 10, 2 6, 3
	C	${}^{12}\text{C} ({}^3\text{He}, \alpha) {}^{11}\text{C}$	$Q > 0$	${}^9\text{Be} ({}^3\text{He}, n) {}^{11}\text{C}$ ${}^{10}\text{B} ({}^3\text{He}, d) {}^{11}\text{C}$ + ${}^{11}\text{B} ({}^3\text{He}, t) {}^{11}\text{C}$ ${}^{14}\text{N} ({}^3\text{He}, \alpha) {}^{11}\text{C}$ ${}^{16}\text{O} ({}^3\text{He}, 2\alpha) {}^{11}\text{C}$	$Q > 0$ $Q > 0$ 2, 5 10, 2 6, 3
	N	${}^{14}\text{N} ({}^3\text{He}, \alpha) {}^{13}\text{N}$	$Q > 0$	${}^{11}\text{B} ({}^3\text{He}, n) {}^{13}\text{N}$ ${}^{12}\text{C} ({}^3\text{He}, pn) {}^{13}\text{N}$ + ${}^{12}\text{C} ({}^3\text{He}, d) {}^{13}\text{N}$	$Q > 0$ 7, 2 4, 4

TABLEAU XVII (Suite)

Particule chargée utilisée	Élément à doser	Réaction nucléaire	Seuil en MeV	Principales réactions compétitives	Seuil en MeV
				$^{16}\text{O} (^3\text{He}, \alpha) ^{13}\text{N}$ $^{19}\text{F} (^3\text{He}, 2\alpha) ^{13}\text{N}$	12, 8 5, 6
	O	$^{16}\text{O} (^3\text{He}, p) ^{18}\text{F}$ $^{16}\text{O} (^3\text{He}, n) ^{18}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} ^{18}\text{F}$	$Q > 0$ 3, 8	$^{19}\text{F} (^3\text{He}, \alpha) ^{18}\text{F}$ $^{20}\text{Ne} (^3\text{He}, \alpha p) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (^3\text{He}, 2\alpha) ^{18}\text{F}$ $^{24}\text{Mg} (^3\text{He}, 2\alpha p) ^{18}\text{F}$ $^{27}\text{Al} (^3\text{He}, 3\alpha) ^{18}\text{F}$	$Q > 0$ 3, 1 0, 37 13, 5 11, 5
	F	$^{19}\text{F} (^3\text{He}, \alpha) ^{18}\text{F}$	$Q > 0$	$^{16}\text{O} (^3\text{He}, p) ^{18}\text{F}$ $^{16}\text{O} (^3\text{He}, n) ^{18}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} ^{18}\text{F}$ $^{20}\text{Ne} (^3\text{He}, \alpha p) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (^3\text{He}, 2\alpha) ^{18}\text{F}$ $^{24}\text{Mg} (^3\text{He}, 2\alpha p) ^{18}\text{F}$ $^{27}\text{Al} (^3\text{He}, 3\alpha) ^{18}\text{F}$	$Q > 0$ 3, 8 3, 1 0, 37 13, 5 11, 5

TABLEAU XVII (suite)

Particule chargée utilisée	Elément à doser	Réaction nucléaire	Seuil en MeV	Principales réactions compétitives	Seuil en MeV
	Be	${}^9\text{Be}(\alpha, 2n){}^{11}\text{C}$	18, 8	${}^{10}\text{B}(\alpha, t){}^{11}\text{C}$ +	15, 6
				${}^{11}\text{B}(\alpha, \text{tn}){}^{11}\text{C}$	30, 8
				${}^{12}\text{C}(\alpha, \alpha n){}^{11}\text{C}$	25
				${}^{14}\text{N}(\alpha, \alpha t){}^{11}\text{C}$	29, 2
				${}^{16}\text{O}(\alpha, 2\alpha n){}^{11}\text{C}$	32, 5
	B	${}^{10}\text{B}(\alpha, n){}^{13}\text{N}$ + ${}^{11}\text{B}(\alpha, 2n){}^{13}\text{N}$	Q > 0 14, 2	${}^{12}\text{C}(\alpha, t){}^{13}\text{N}$	23, 8
				${}^{14}\text{N}(\alpha, \alpha n){}^{13}\text{N}$	13, 6
				${}^{16}\text{O}(\alpha, \alpha t){}^{13}\text{N}$	26, 7
				${}^{19}\text{F}(\alpha, 2\alpha 2n){}^{13}\text{N}$	34, 5
	C	${}^{12}\text{C}(\alpha, \alpha n){}^{11}\text{C}$	25	${}^9\text{Be}(\alpha, 2n){}^{11}\text{C}$	18, 8
				${}^{10}\text{B}(\alpha, t){}^{11}\text{C}$ +	15, 6
				${}^{11}\text{B}(\alpha, \text{tn}){}^{11}\text{C}$	30, 8
				${}^{14}\text{N}(\alpha, \alpha t){}^{11}\text{C}$	29, 2
				${}^{16}\text{O}(\alpha, 2\alpha n){}^{11}\text{C}$	32, 5

TABLEAU XVII (suite)

Particule chargée utilisée	Élément à doser	Réaction nucléaire	Seuil en MeV	Principales réactions compétitives	Seuil en MeV
α E max $\leq$ 42 MeV		$^{12}\text{C}(\alpha, n)^{15}\text{O}$	11, 3	$^{14}\text{N}(\alpha, t)^{15}\text{O}$ $^{16}\text{O}(\alpha, an)^{15}\text{O}$	16, 1 19, 6
	N	$^{14}\text{N}(\alpha, an)^{13}\text{N}$	13, 6	$^{10}\text{B}(\alpha, n)^{13}\text{N}$ + $^{11}\text{B}(\alpha, 2n)^{13}\text{N}$ $^{12}\text{C}(\alpha, t)^{13}\text{N}$ $^{16}\text{O}(\alpha, at)^{13}\text{N}$ $^{19}\text{F}(\alpha, 2\alpha 2n)^{13}\text{N}$	$Q > 0$ 14, 2 23, 9 26, 7 34, 5
	O	$^{16}\text{O}(\alpha, d)^{18}\text{F}$ + $^{16}\text{O}(\alpha, pn)^{18}\text{F}$ + $^{16}\text{O}(\alpha, 2n)^{18}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} ^{18}\text{F}$	20, 4 23, 2 29, 7	$^{15}\text{N}(\alpha, n)^{18}\text{F}$ $^{19}\text{F}(\alpha, an)^{18}\text{F}$ $^{20}\text{Ne}(\alpha, \alpha d)^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na}(\alpha, 2\alpha n)^{18}\text{F}$ $^{24}\text{Mg}(\alpha, 2\alpha d)^{18}\text{F}$ $^{27}\text{Al}(\alpha, 3\alpha n)^{18}\text{F}$	8, 1 12, 6 25, 2 25 35, 4 35, 5
	F	$^{19}\text{F}(\alpha, an)^{18}\text{F}$	12, 6	$^{15}\text{N}(\alpha, n)^{18}\text{F}$ $^{16}\text{O}(\alpha, d)^{18}\text{F}$ +	8, 1 20, 4

TABLEAU XVII (suite)

Particule chargée utilisée	Elément à doser	Réaction nucléaire	Seuil en MeV	Principales réactions compétitives	Seuil en MeV
				$^{16}\text{O}(\alpha, \text{pn})^{18}\text{F}$ $^{16}\text{O}(\alpha, 2\text{n})^{18}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} ^{18}\text{F}$ $^{20}\text{Ne}(\alpha, \alpha\text{d})^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na}(\alpha, 2\alpha\text{n})^{18}\text{F}$ $^{24}\text{Mg}(\alpha, 2\alpha\text{d})^{18}\text{F}$ $^{27}\text{Al}(\alpha, 3\alpha\text{n})^{18}\text{F}$	23, 2 29, 7 25, 2 25 35, 4 35, 5

Remarque : -----
En groupant les particules chargées émises dans certaines réactions du tableau on obtient des noyaux d'isotopes d'éléments naturels. Les réactions sont alors du type fission. Les seuils calculés pour ces dernières sont en général inférieurs à ceux ci-dessus, relatifs à la production du même radio-élément. Nous n'avons pas mentionné toutes les réactions possibles pour ne pas trop surcharger le tableau. L'objet de ce dernier est de montrer surtout, quels sont les éléments qui pourraient interférer. Les réactions nucléaires les plus complexes étant données à titre indicatif afin de mettre en évidence que les seuils sont suffisamment bas pour qu'il puisse y avoir perturbation de l'analyse. Certaines de ces réactions complexes ont d'ailleurs fait l'objet de déterminations quantitatives [38] [57] [61] [66].

TABLEAU XVIII

Exemples de teneurs des éléments interférents pour lesquelles la même activité est obtenue qu'avec une teneur unitaire de l'élément à doser

Elément à doser	Nature de la particule chargée et énergie	Radio élément produit	Teneurs des éléments interférents								
			Be	B	C	N	O	F	Na	Mg	Al
Be	^3He	^{11}C									
	5 MeV		1	2, 5	0, 7						
	10 "		1	1	0, 4						
	15 "		1	0, 6	0, 3	(21)	(30)				
	20 "		1	0, 4	0, 25	(6, 3)	(4, 2)				
	α	^{11}C									
B	30 MeV		1	(16)	20						
	35 "		1	(4, 2)	1, 6	(≈ 34)	(22)				
	40 "		1	(5)	1	(≈ 20)	(2, 5)				
	p	^{11}C									
	5 MeV			1		10					
	10 "			1		2					
	15 "			1		1, 6					
	d	^{11}C									
	10 MeV			1		30					
	15 "			1	(300)	3, 8					
20 "			1	(32)	5, 3						

TABLEAU XVIII (suite)

Elément à doser	Nature de la particule chargée et énergie	Radio élément produit	Teneurs des éléments interférents								
			Be	B	C	N	O	F	Na	Mg	Al
C	³ He	¹¹ C									
	5 MeV		0,4	1	0,3						
	10 "		1	1	0,4						
	15 "		1,6	1	0,5	(35)	(50)				
	20 "		2,5	1	0,6	(15)	(10)				
	α	¹³ N									
	25 MeV			1	(20)	0,7					
	30 "			1	(9,5)	0,5					
	35 "			1	(7,2)	0,55					
	40 "			1	(6)	0,65					
	P	¹³ N									
	7 MeV				1		0,4				
	10 "				1		0,12				
	15 "				1	(0,13)	0,05				
	d										
	12 MeV			1	(20)	200					

TABLEAU XVIII (suite)

Elément à doser	Nature de la particule chargée et énergie	Radio élément produit	Teneurs des éléments interférents								
			Be	B	C	N	O	F	Na	Mg	Al
N	15 Mev	¹¹ C			1	(15)	25				
	20 "				1	(6, 8)	4				
	³ He										
	5 Mev				1						
	10 "				1	(^{>} 210 ²)					
	15 "			1	(70)	(100)					
	20 "			1	(25)	(17)					
	α	¹¹ C									
	30 Mev				1						
	35 "				1	(≈ 20)	(13)				
	40 "				1	(≈ 20)	(2, 5)				
	p	¹¹ C.									
	5 Mev										
	10 "					1					
15 "							1				

TABLEAU XVIII (suite)

Elément à doser	Nature de la particule chargée et énergie	Radio élément produit	Teneurs des éléments interférents								
			Be	B	C	N	O	F	Na	Mg	Al
	d	¹¹ C		0,033		1					
	10 MeV										
	15 "				(80)	1					
	20 "	¹⁵ O		0,26		1					
				0,18	(6)	1					
	10 MeV										
	15 "	¹³ N				1	> 200				
	20 "					1	45				
	³ He					1	65				
	5 MeV	¹³ N		(45)		1					
	10 "			(25)	(0,3)	1					
	15 "			(20)	(0,12)	1					
	20 "			(22)	(0,1)	1					
	α	¹³ N									
	25 MeV			1,5	(30)	1					
	30 "			1,9	(18)	1					
	35 "			1,8	(13)	1					
	40 "		1,5	(9)	1						

TABLEAU XVIII (suite)

Elément à doser	Nature de la particule chargée et énergie	Radio élément produit	Teneurs des éléments interférents									
			Be	B	C	N	O	F	Na	Mg	Al	
O	p	¹³ N										
	7 MeV				4		1					
	10 "				8, 5		1					
	15 "	¹⁸ F			20	(2, 6)	1					
	10 MeV						1	10				
	12, 5 "						1	0, 12				
	15 "					1	0, 036					
	d	¹³ N										
	15 MeV				0, 04	(0, 6)	1					
	20 "				0, 25	(1, 7)	1					
	³ He	¹⁸ F										
	5 MeV						1	14	(20)			
	10 "						1	18	(50)			
	15 "						1	20	(25)	(⁴ 10 ^{>})	(⁴ 10 ^{>})	
	20 "						1	17	(15)	(³ 10 ^{1,7})	(³ 10 ^{2,5})	

TABLEAU XVIII (suite)

Elément à doser	Nature de la particule chargée et énergie	Radio élément produit	Teneurs des éléments interférents								
			Be	B	C	N	O	F	Na	Mg	Al
F	α	^{18}F				(70)	1	0, 13			
	30 MeV										
	35 "					(170)	1	0, 40	(70)		
	40 "				(250)	1	0, 58	(23)			
	P	^{18}F									
	10 MeV					0, 1	1				
	12, 5 "					8, 5	1				
	15 "					28	1				
	^3He	^{18}F									
	5 MeV					0, 07	1	(1, 4)			
	10 "					0, 055	1	(2, 8)			
	15 "					0, 05	1	(1, 2)	(> 500)	(> 500),	
	20 "					0, 06	1	(0, 9)	(100)	(147)	
	α	^{18}F									
	30 MeV					(540)	7, 7	1			
	35 "					(420)	2, 5	1	(175)		
	40 "				(430)	1, 7	1	(40)			

Remarque : Les valeurs entre parenthèses sont déduites des courbes de rendement publiées par N. N. KRASNOV et al. [61], sauf celles, relatives à la production de ^{11}C par activation de l'oxygène avec des α , données d'après J. L. DEBRUN et al. [38] [66].

E. RICCI et R. L. HAHN ont publié des tableaux contenant des valeurs de sensibilités relatives à l'activation avec des ^3He de 18 MeV [67] dans lesquels ils donnent les activités mesurées avec un certain système de comptage en cpm par ppm/ μA , l'échantillon étant supposé en aluminium. Leurs résultats ne sont donc pas comparables avec les nôtres. Dans une autre publication ces auteurs indiquent des valeurs calculées, en dpm pour un faisceau de 10/ μA et une durée d'irradiation de une période, concernant les dosages d'oxygène et de carbone [68]. En adoptant le même critère que ci-dessus pour définir les sensibilités de détection, la conversion de leurs valeurs calculées donne les chiffres du tableau XIX dans lequel nous indiquons aussi les résultats déduits de nos expériences.

En se rappelant que la sensibilité est améliorée d'un facteur 2 environ en passant de l'aluminium à l'uranium, on peut constater un très bon accord entre les valeurs calculées par les auteurs précités et nos résultats expérimentaux à 10 MeV. Pour 5 MeV nous trouvons une sensibilité approximativement deux fois meilleure que le calcul. Ce qui est encore très satisfaisant compte tenu du fait qu'à cette énergie on est relativement près du seuil pratique. La variation de l'activation avec l'énergie est donc particulièrement rapide. Or, on avait recours à des écrans absorbants pour dégrader l'énergie de 22 à 5 MeV, de sorte que l'activation des deux éléments est favorisée du fait de l'élargissement du spectre des particules chargées qui en résulte.

En ce qui concerne l'importance relative des principales réactions nucléaires compétitives, la comparaison de nos valeurs avec celles provenant des travaux d'autres auteurs apparaît dans le tableau XX. Dans l'ensemble les valeurs concordent sensiblement. Dans certains cas néanmoins il y a des écarts importants.

Les publications consultées pour constituer ce tableau sont celles de :

RICCI et HAHN [68] qui ont calculé l'importance des interférences de bore dans les dosages de carbone, de fluor dans les dosages d'oxygène pour des ^3He de 5 et 10 MeV.

TABEAU XIX

Comparaison entre les valeurs de sensibilités calculées par
RICCI et HAHN [68] et celles déduites de nos expériences

Elément à doser	Radioélément mesuré	Energie des ^3He	Sensibilité de détection en 10^{-9} g/g (ppb massique) dans l'aluminium	
			RICCI et HAHN	Nos résultats
C	^{11}C	5 MeV	30	12
		10 "	4	3, 6
O	^{18}F	5 "	20 *	17
		10 "	2 *	3, 7

* - dans l'uranium.

J. L. DEBRUN et al. [38] [66] qui ont déterminé les courbes d'interférences, de Be et O dans les dosages de C, de fluor dans les dosages d'oxygène, par activation avec les ^3He et les particules α .

N. N. KRASNOV et al. [61] qui donnent un très grand nombre de courbes expérimentales des activités induites dans des cibles épaisses en fonction de l'énergie des particules chargées utilisées, p, d, ^3He et α .

P. KUIN [69], a déterminé aussi, l'importance de l'interférence de l'azote dans les dosages de bore par activation avec les protons. Il a trouvé notamment que le rapport $^{11}\text{C}_\text{B} / ^{11}\text{C}_\text{N}$ est d'environ 50 à 4,5 MeV, 5 à 10 MeV et 2 à 14 MeV.

TABLEAU XX

Comparaison de nos résultats concernant l'importance relative de quelques réactions compétitives, avec ceux déduits de publications d'autres auteurs

Energie et nature des particules chargées	Rapports des rendements d'activation relatifs à la production d'un même isotope actif à partir de deux éléments différents.						
	$^{11}\text{C}_\text{B}/^{11}\text{C}_\text{N}$		$^{13}\text{N}_\text{O}/^{13}\text{N}_\text{C}$		$^{18}\text{F}_\text{O}/^{18}\text{F}_\text{F}$		
	nos valeurs	d'après [61]	nos valeurs	d'après [61]	nos valeurs	d'après [61]	
p							
	10						
	2	2	8,5	9	10		
	1,6	1,3	20	19	0,036	0,025	
d							
10 MeV							
15 "							
20 "							

TABLEAU XX (suite)

Energie et nature des particules chargées	Rapports des rendements d'activation relatifs à la production d'un même isotope actif à partir de deux éléments différents.											
	$^{11}\text{C}_\text{C}/^{11}\text{C}_\text{Be}$			$^{11}\text{C}_\text{C}/^{11}\text{C}_\text{B}$			$^{18}\text{F}_\text{O}/^{18}\text{F}_\text{F}$					
	nos valeurs	d'après [38] [66]	d'après [61]	nos valeurs	d'après [68]	d'après [61]	nos valeurs	d'après [68]	d'après [38] [66]	d'après [61]		
^3He												
5 MeV	1,5		1,7	3,7	5,5	4	14	12	6,7	7,5		
10 "	2,5	1,9	2,5	2,5	5,3	2,5	18	16	13	17		
15 "	3,3	2,5	2,7	2		3,5	20		12	20		
20 "	4	3,3	3,1	1,7		2,8	17		11	16		
α												
25 MeV												
30 "	0,05	0,45	0,1	1,5	1,9	1,9	0,13	0,12	0,37			
35 "	0,6	1	0,45	1,8	4,5	5	0,40	0,3	0,56			
40 "	1	1,5	1	1,5			0,58	0,55	0,68			

D - COMPARAISON ENTRE LES POSSIBILITES OFFERTES
RESPECTIVEMENT PAR LES ACTIVATIONS AVEC LES p, d, ^3He , α et
LES PHOTONS γ POUR DETERMINER DES TRACES DE Be, B, C, N,
O ET F.

En principe, les six éléments ci-dessus sont dosables par activation avec les particules chargées, alors que quatre seulement C, N, O et F peuvent être déterminés au moyen des photons γ , à moins d'avoir recours à des techniques très spéciales dont l'objet dépasse le cadre du présent travail, pour doser aussi Be et B.

D'après ce qui précède, il est certain que les particules chargées permettent des dosages plus sensibles que les photons γ . Encore que la comparaison entre les deux moyens n'est pas simple. En effet, pour calculer les limites de détection dans le cas de l'activation par les photons γ , on s'est référé à une intensité de faisceau de $100\mu\text{A}$. Or, il existe actuellement des accélérateurs linéaires capables de fournir des faisceaux d'électrons, d'intensité, plusieurs centaines de μA . Mais même en supposant que l'on irradie un échantillon de quelques grammes, il faut admettre qu'on atteint difficilement les performances des particules chargées. D'autant plus que si les problèmes de refroidissement de l'échantillon le permettent, on peut utiliser là aussi des intensités supérieures à $10\mu\text{A}$.

En revanche, sur le plan des réactions nucléaires compétitives les photons sont plus intéressants. Il semble en effet que l'importance relative des interférences diminue très rapidement en dessous de 30 MeV, pour déjà être négligeable vers 25 MeV (Cf. figure 61). Un autre avantage caractéristique est celui que l'activation peut être uniforme dans un échantillon de dimensions convenables. Il ne faut en effet pas oublier qu'il existe un gradient d'activation dû à la distribution spatiale du faisceau de photons et que ces derniers sont absorbés dans l'échantillon par des processus autres que les réactions nucléaires, en plus, (effet Compton effet photoélectrique, mais principalement par création de paires aux énergies utilisées).

Dans le tableau XXI on donne d'après [20] quelques exemples d'épaisseurs moitié ($\phi / \phi_0 = 1/2$).

TABLEAU XXI

Epaisseurs moitié en cm

E_{γ} MeV	Al	Cu	Pt
15	11,7	2,40	0,60
20	11,8	2,28	0,54
30	11,7	2,10	0,47
40	11,4	1,98	0,44

Ces valeurs montrent, que l'on ne peut pas irradier des échantillons de dimensions quelconques, si l'on veut éviter un gradient d'activation. Cela surtout pour les éléments lourds où le facteur absorption des photons l'emporte sur celui provenant de la distribution spatiale.

I - Choix du moyen d'activation en fonction de la nature de l'élément à doser.

De l'ensemble des résultats exposés dans les pages précédentes on peut tirer les conclusions préliminaires suivantes en se référant aux valeurs des tableaux IV, VI, XVI, XVIII et aux variations des courbes traduisant l'importance des réactions d'interférences, des figures 61, 80 à 88.

a) - Béryllium

On ne peut utiliser que les ^3He et les particules α . Les sensibilités de détection sont approximativement les mêmes. En ce qui concerne les interférences, les particules α semblent plus intéressantes.

b) - Bore
.....

On peut utiliser les p, d, ^3He et α . C'est avec les premiers que l'on a les meilleures sensibilités. En revanche, avec les deutons l'interférence de l'azote est moins importante. Dans le cas général l'activation par les deutons pour doser cet élément est donc à préconiser. D'autant plus que les sensibilités possibles avec ces particules ne sont pas tellement inférieures à celles que donnent les protons.

c) - Carbone
.....

On peut activer au moyen des photons γ , p, d, ^3He et α . La meilleure sensibilité est obtenue en utilisant les deutons. Quant aux interférences, les photons γ permettent de les éliminer totalement en irradiant à une énergie inférieure à 25 MeV, mais au détriment de la sensibilité. En ne considérant que les particules chargées, il semble que les deutons l'emportent également sur le plan des réactions compétitives.

d) - Azote
.....

Là encore, on peut avoir recours au cinq moyens d'activation photons γ , p, d, ^3He et α . La meilleure sensibilité est obtenue avec les deutons d'abord avec les protons ensuite. Les interférences sont éliminables par activation avec les photons, mais aussi avec les deutons en choisissant une énergie inférieure à 10 MeV. Il semble donc bien que pour cet élément aussi, les deutons sont les plus intéressants.

e) - Oxygène
.....

On peut utiliser les photons γ , les p (^{13}N ou ^{18}F), d, ^3He et α . Les sensibilités de détection sont approximativement les mêmes pour les p (^{13}N) ^3He et α . Par contre, on peut doser l'oxygène en s'affranchissant de toute interférence connue actuellement en irradiant avec des protons d'énergie inférieure à 10 MeV et aussi avec les photons ($E < 25 \text{ MeV}$) Les sensibilités sont hélas beaucoup moins intéressantes.

Pour déterminer des traces infimes d'oxygène, pratiquement seuls les ^3He s'imposent. L'échantillon analysé doit naturellement avoir une teneur en fluor inférieure à celle en oxygène. Avec les α les interférences sont plus importantes comme l'avait d'ailleurs déjà montré J. L. DEBRUN et al [38][66]. Quant aux protons, on pourrait les utiliser aussi pour doser l'oxygène avec une bonne sensibilité en mesurant l'azote 13. Mais il faudrait pour des énergies supérieures à 10 MeV, que les teneurs en carbone et surtout en azote soient inférieures.

f) - Fluor

Photons γ , p, ^3He et α sont utilisables. La meilleure sensibilité est obtenue avec ces derniers. La meilleure sélectivité avec les photons γ . Il semblerait que les protons sont intéressants aussi. En effet, à 15 MeV, la seule interférence connue est celle de l'oxygène. Pour des teneurs du même ordre de grandeur des deux éléments, l'erreur introduite par l'oxygène atteint quelques pour cent au plus.

g) - Remarques

Plusieurs remarques s'imposent à propos de ce qui précède :

- D'abord, il est bien évident que sur le plan pratique, le choix du moyen dépend avant tout du problème à résoudre. Les autres impuretés présentes dans l'échantillon jouent un rôle prépondérant. Ce sont elles, suivant leur teneur relative par rapport à l'élément à doser qui guident le choix. Il faut enfin aussi tenir compte de la séparation chimique du radioélément à mesurer. En effet, certains éléments sont déterminables via 2 ou 3 radioéléments différents. Par exemple, l'oxygène peut être dosé en mesurant ^{13}N [$^{16}\text{O} (p, \alpha) ^{13}\text{N}$], ^{15}O [$^{16}\text{O} (\gamma, n) ^{15}\text{O}$] ou ^{18}F [$^{16}\text{O} (\alpha \text{ ou } ^3\text{He}) ^{18}\text{F}$, $^{18}\text{O} (p, n) ^{18}\text{F}$]. Or il se peut que pour certains matériaux la séparation de l'un de ces isotopes actifs est difficile voire impossible de sorte que l'on soit obligé d'utiliser l'un des deux autres.

- D'autre part, il faut signaler que l'oxygène peut aussi être déterminé au moyen de la réaction $^{16}\text{O} (d, n) ^{17}\text{F}$. La période du fluor 17 est de 66 secondes. M. J. LACROIX et al ont mesuré la section efficace de cette réaction jusqu'à 27 MeV, et discuté de son utilisation pour doser

l'oxygène [70]. E. SCHUSTER et K. WOHLLEBEN ont utilisé cette réaction pour doser l'oxygène à la surface de matériaux semi-conducteurs [71] en procédant après irradiation à une séparation chimique rapide du fluor 17. Ils ont aussi employé des deutons de 3 MeV pour déterminer B, C et N. Pour une intensité de faisceau de $5,4 \text{ A cm}^{-2}$, ces auteurs indiquent des sensibilités de $3 \cdot 10^{-10} \text{ g}$ pour le bore, $5 \cdot 10^{-11} \text{ g}$ pour le carbone, $6 \cdot 10^{-11} \text{ g}$ pour l'azote et $4 \cdot 10^{-11} \text{ g}$ pour l'oxygène. Signalons que ces auteurs ont déterminé avec beaucoup de soin, en vue d'applications analytiques, les fonctions d'excitation des réactions $^{10}\text{B}(\text{d}, \text{n})^{11}\text{C}$, $^{12}\text{C}(\text{d}, \text{n})^{13}\text{N}$, $^{14}\text{N}(\text{d}, \text{n})^{15}\text{O}$ et $^{16}\text{O}(\text{d}, \text{n})^{17}\text{F}$ jusqu'à 3,2 MeV [72].

Une autre réaction avec des deutons peut enfin servir à déterminer l'oxygène. C'est celle qui produit du fluor 18, $^{18}\text{O}(\text{d}, 2\text{n})^{18}\text{F}$. Pour être plus précis il faut y ajouter les deux autres $^{16}\text{O}(\text{d}, \gamma)^{18}\text{F}$ et $^{17}\text{O}(\text{d}, \text{n})^{18}\text{F}$. M. D. TRAN et al [65] ont étudié les possibilités offertes par ce moyen, jusqu'à 27 MeV, pour doser l'oxygène. Ils ont mis en évidence que l'interférence du fluor $^{19}\text{F}(\text{d}, \text{t ou dn})^{18}\text{F}$ est très importante et que la méthode est beaucoup moins sensible que celle consistant à activer avec les particules α . Par contre, d'après leurs résultats, les deutons pourraient être intéressants pour déterminer le fluor si les teneurs en oxygène sont du même ordre de grandeur.

- Enfin, les isotopes actifs ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O et ^{18}F , pourraient naturellement être obtenus par l'intermédiaire d'autres réactions nucléaires compétitives que celles indiquées dans les tableaux précédents, qui nous semblent pourtant contenir les principales. Il n'est donc pas exclu que d'autres réactions produisant ces isotopes et pouvant par conséquent interférer lors des dosages soient mises en évidence, lors d'études de cas concrets d'analyses.

h)- Tableau récapitulatif

Pour récapituler les possibilités des photons γ et des particules chargées, on a rassemblé dans le tableau XXII les moyens d'activation utilisables pour déterminer Be, B, C, N, O et F, en se limitant à ceux ayant fait l'objet de nos expériences. On indique notamment

TABLEAU XXII

Moyens d'activation utilisables pour doser Be, B, C, N, O et F. Principaux éléments pouvant interférer. Caractéristiques des divers moyens possibles

Elément à doser	Moyens d'activation utilisables	Radioélément mesuré	Principaux éléments pouvant interférer	Méthode d'activation		
				la plus sensible	la plus sélective	optimale
Be	^3He	^{11}C	B, C, N, O	^3He et α		α
	α	^{11}C	B, C, N, O			
B	p	^{11}C	N	p	d	d
	d	^{11}C	N, C		pour	
	^3He	^{11}C	Be, C, N, O		E < 8 MeV	
	α	^{13}N	C, N			
C	γ	^{11}C	N, O	d	γ	d
	p	^{13}N	N, O		pour E < 25 MeV	
	d	^{13}N	N, O		p	
	^3He	^{11}C	Be, B, N, O		pour	
	α	^{11}C	Be, B, N, O		E < 6 MeV d	
	"	^{15}O	N, O		pour E < 7 MeV	

TABLEAU XXII

(suite)

Elément à doser	Moyens d'activation utilisables	Radioélément mesuré	Principaux éléments pouvant interférer	Méthode d'activation	
				la plus sensible	la plus sélective optimale
N	γ	^{13}N	O	d	γ pour E < 35 MeV
	p	^{11}C	B		
	d	^{11}C	B, C		
	"	^{15}O	O		d pour E < 12 MeV
	^3He	^{13}N	B, C		
	α	^{13}N	B, C		
O	γ	^{15}O	Ne, F	α	γ pour E < 25 MeV
	p	^{13}N	C, N		p pour E < 10 MeV
	"	^{18}F	F		
	d	^{13}N	C, N		
	^3He	^{18}F	F, Ne, Na, Mg, Al		
	α	^{18}F	N, F, Ne, Na, Mg, Al, Si		
	γ	^{18}F	Ne, Na	α	γ pour E < 30 MeV
	p	^{18}F	O		
F	^3He	^{18}F	O, Ne, Na, Mg, Al		
	α	^{18}F	N, O, Ne, Na, Mg, Al, Si		

dans ce tableau, la méthode d'activation, qui permet d'obtenir la meilleure sensibilité intrinsèque en négligeant par conséquent l'existence des réactions nucléaires compétitives, celle qui est la plus sélective, définie arbitrairement comme étant celle pour laquelle l'importance relative des interférences est inférieure à 10^{-2} d'après l'état actuel de nos connaissances, pour la définir on s'est référé aux courbes donnant l'importance relative des réactions nucléaires compétitives en fonction de l'énergie des particules chargées et des photons γ . D'autre part, dans la dernière colonne nous donnons, ce qui à notre avis, en considérant le cas général uniquement, est le moyen optimal. C'est à dire celui caractérisé à la fois par une sensibilité et une sélectivité suffisante pour résoudre les problèmes pratiques les plus courants que l'on rencontre où il s'agit de déterminer ces éléments légers dans des matériaux de très grande pureté dans lesquels ils s'y trouvent le plus souvent à l'état de traces infimes aux mêmes ordres de grandeur de teneurs.

Les conclusions que l'on peut tirer du tableau XXII ne sont évidemment valables que dans la mesure où l'on ne s'écarte pas des gammes d'énergie explorées qui sont d'environ 5 à 15 MeV pour les protons, 4 à 20 MeV pour les deutons, 5 à 20 MeV pour les ^3He et 25 à 42 MeV pour les particules α .

Il ressort de ce tableau que le béryllium est le seul élément qui ne peut être déterminé d'une façon sélective parmi ceux ayant fait l'objet de nos expériences. Néanmoins, en irradiant avec des particules α de 30 MeV, ce métal est dosable avec une bonne sensibilité (cf. Tableau XVI) et les interférences du bore et du carbone sont beaucoup plus faibles qu'avec les ^3He (cf. Tableau XVIII). Ce qui justifie le choix des particules α comme moyen optimal.

E - METHODES DE SEPARATION CHIMIQUE DES ISOTOPES ACTIFS OBTENUS PAR IRRADIATION DE Be, B, C, N, O ET F AVEC LES PARTICULES CHARGÉES ET LES PHOTONS γ .

Les radioéléments produits et utilisés pour déterminer les éléments ci-dessus sont principalement ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O et ^{18}F . Dans certains cas, où d'une part, la nature du matériau analysé, d'autre part les teneurs des autres impuretés, le permettent, on peut déterminer les éléments précédents d'une façon non destructive sans séparation chimique après irradiation. Ils sont relativement rares et de toute façon, l'expérience montre, que même pour eux, une séparation devient indispensable lorsque l'on veut déterminer des teneurs infimes.

Enfin, la séparation chimique, ajoute un critère supplémentaire à l'identification du radioélément provenant de l'impureté à doser. En effet, un très grand nombre d'éléments peuvent donner par activation avec les particules chargées et les photons γ des isotopes actifs de périodes voisines de celles des 4 nucléides ci-dessus. Une confusion est donc toujours possible surtout lorsque les activités mesurées sont très faibles où l'identification précise de la période devient délicate. La séparation chimique élimine cette incertitude du fait même de sa spécificité

Donc, dans le cas général, en déterminant un élément par activation avec les particules chargées ou les photons γ , son dosage est caractérisé par l'ensemble des critères d'identification suivants :

- nature de la réaction nucléaire, particules et énergie
- période de décroissance, rayonnement émis et mesuré
- séparation chimique

D'où l'avantage considérable présenté par les méthodes d'activation pour doser des traces infimes d'impuretés aussi délicates que les éléments légers.

En ce qui concerne les méthodes de séparation chimique, il n'en existe pas qui soit universelle pour chacun des radioéléments

^{11}C , ^{13}N , ^{15}O et ^{18}F . Les modes opératoires dépendent essentiellement de la nature des échantillons analysés. Celles dont nous donnons une description schématique et sommaire ci-dessous ne représentent par conséquent qu'une partie des méthodes possibles. On s'est limité à décrire celles utilisées couramment dans notre laboratoire pour effectuer des dosages systématiques.

I - Séparation simultanée du carbone 11 et de l'azote 13

Il s'agit d'une adaptation de la méthode étudiée par P. BOILLOT et al [73] pour doser l'azote dans les aciers. L'échantillon est mis dans un creuset contenant 20 à 30 g d'un mélange fondant oxydant par g de matériau analysé, se composant de 87,5% Pb_3O_4 et 12,5% B_2O_3 . Ces deux constituants intimement mêlés sont préfondus à 800 °C. On obtient un verre jaune foncé assimilable au borate de plomb. Le mélange liquide est directement versé dans les creusets préparés à l'avance. Ce fondant se révèle d'un maniement simple et son domaine d'emploi semble vaste.

Pour le chauffage on utilise un générateur HF. Le couplage doit se faire directement sur le fondant. La fréquence d'oscillation nécessaire est supérieure à 5M HZ. Une puissance HF de 4 KW est suffisante. Comme la réaction sur le fondant ne démarre que vers 700 °C, on ajoute comme igniteur 1 g environ de grenaille de fer contenant d'importantes quantités de carbone et d'azote (plusieurs dizaines de $\mu\text{g/g}$) afin d'avoir un effet d'entraîneur.

La fusion vers 1000 °C dure 3 à 5 minutes. Le carbone et les carbures donnent CO et CO_2 , l'azote et les nitrures N_2 et oxydes d'azote. Les gaz libérés entraînés par un courant d'hélium de faible débit 100 à 200 cm^3 par minute rencontrent successivement (cf. figure 89) [33] [74] :

- un tampon de laine de verre et un filtre en verre fritté, destinés à arrêter les particules solides pouvant être entraînées par le gaz vecteur.

- un four à 500 °C contenant successivement du cuivre en poudre et copeaux, ayant pour but de réduire les oxydes d'azote formés, du CuO qui oxyde CO en CO_2 .

- un tube contenant du réactif de SCHUTZE ($I_2 O_5$ sur silicagel) qui poursuit l'oxydation du CO si nécessaire.

- un four à laine d'argent dont la température est de 300 à 350 °C. Il est essentiellement destiné à piéger les halogènes dont les isotopes actifs pourraient perturber les mesures du piège de CO_2 .

Au delà, le gaz vecteur ne contient en principe plus que CO_2 et N_2 qui sont respectivement piégés le premier sur l'ascarite, le second sur un tamis moléculaire LINDE 5 Å refroidi à l'azote liquide. Ces deux pièges sont en permanence, chacun entre deux compteurs Na I (Tl) de grandes dimensions ($\varnothing$ 100 mm h 80 mm) reliés à des sélecteurs multicanaux. On mesure les γ d'annihilation des β^+ émis respectivement par ^{11}C et ^{13}N . Les efficacités de comptage sont faibles 1 à 2%. Elles pourraient certainement être meilleures en concevant des ensembles pièges compteurs spécialement adaptés.

Après la fusion, on poursuit le balayage par le courant d'hélium pendant quelques minutes. La séparation est terminée 10 minutes environ après la fin de l'irradiation. On a représenté figure 90 les courbes de variation des activités mesurées sur les deux pièges en fonction du temps [74].

II - Séparation de l'oxygène 15 par fusion réductrice.

Là aussi, il s'agit d'une transposition de la fusion réductrice classique sous gaz inerte à l'analyse par activation. Les limitations sont donc celles de cette méthode du moins en ce qui concerne l'extraction de l'oxygène. En particulier la récupération complète de l'oxygène 15 exige un puissant four à induction ($> 12KW$ $f = 500 KHZ$) et l'utilisation de bains adaptés à chaque cas pour améliorer le rendement et la reproductibilité. La période de l'oxygène 15 étant de 2,03 minutes, la séparation doit être effectuée en quelques minutes.

Par chauffage à induction, l'échantillon contenu dans un creuset de graphite est porté à une température supérieure à 2000 °C. Le carbone réduit les oxydes. Le CO formé est entraîné par le gaz vecteur, hélium ou argon, dont le débit est de 5 à 6 litres par minute. La suite du circuit comprend (cf. figure 91) [32] [33] :

- comme ci-dessus un tampon de laine de verre et un filtre en verre fritté pour arrêter les particules solides.
- le réactif de SCHUTZE pour oxyder CO en CO_2
- de l'hopcalite (Mn O_2) pour piéger les oxydes d'azote et éventuellement d'autres éléments actifs comme les halogènes.
- le piège d'ascarite entre les compteurs Na I (Tl) de grandes dimensions.

Il est donc plus simple que celui de la séparation simultanée azote 13, carbone 11. La durée de la fusion est de l'ordre de 2 minutes, on continue à balayer après, pendant 1 à 2 minutes. La séparation est terminée environ 5 minutes après la fin de l'irradiation. Un exemple de courbe de variation de l'activité mesurée sur le piège d'ascarite en fonction du temps est donné figure 92.

Si l'échantillon contient d'importantes quantités de carbone, on rencontre certaines difficultés en utilisant la méthode telle qu'elle est décrite ci-dessus. En effet, l'oxygène inactif contenu dans le creuset, le gaz vecteur, les métaux servant de bain, se combine au carbone 11 de l'échantillon. De sorte que le gaz vecteur contient à la fois ^{11}CO et $\text{C }^{15}\text{O}$, indiscernables chimiquement. En plus de l'activité de l'oxygène 15 on mesure celle provenant de ce carbone 11 [32]. Il est bien entendu que l'on ne pourra pas éliminer complètement l'oxygène "extérieur" ne serait-ce qu'à cause de l'effet entraîneur indispensable si l'on dose des traces, qu'il joue.

Une première solution consiste d'irradier l'échantillon à une énergie voisine du seuil de la réaction $^{12}\text{C} (\gamma, n) ^{11}\text{C}$.

Une autre solution a été proposée par C.A. BAKER et al [75]. Elle consiste à utiliser l'échange isotopique entre l'oxygène du CO_2 et celui de l'oxyde de cuivre d'un four chauffé à environ 1200 °C. Les auteurs précisent que cet échange est assez rapide (quelques minutes), quantitatif (99% de l'oxygène 15 sont fixés sur l'oxyde de cuivre) et que l'on peut déterminer des traces d'oxygène dans un échantillon contenant jusqu'à 1 % de carbone. L'inconvénient est qu'il faut environ 10 minutes pour faire

la séparation. On perd donc en sensibilité.

Il faut remarquer que très souvent dans des matériaux très purs, les teneurs en oxygène et carbone sont voisines. La méthode simple que nous avons décrite peut donc être appliquée à de nombreux cas.

III - Séparation du fluor 18

Le fluor 18 est séparé par distillation de l'acide fluosilicique ($\text{Si F}_6 \text{ H}_2$) avec entraînement à la vapeur. Du fluorure de sodium en solution pourra être utilisé si besoin comme entraîneur inactif. Le silicium provient d'une dizaine de mg de Si O_2 ajoutés à la solution. On peut mesurer directement le distillat ou précipiter un composé de fluor tel fluorure de lanthane La F_3 au chlorofluorure de plomb Pb F Cl par exemple. Cette méthode de séparation du fluor 18 a été particulièrement étudiée par les chercheurs de l'équipe de Ph. ALBERT [53] [76] pour des métaux comme Al, Fe, Ni, Cr et de celle du Pr. TOUSSET [77] pour le silicium. C. K. KIM [78] l'a utilisée aussi pour doser l'oxygène par activation avec les hélions 3 dans Ga P et Ge.

IV - Remarques

Pour séparer le carbone 11 seul on peut utiliser la combustion de l'échantillon dans un courant d'oxygène. G. REVEL dans un récent article [79] décrit une méthode dans laquelle il a prévu aussi un circuit d'argon pour former un alliage avec son échantillon préalablement à la combustion. L'efficacité de cette dernière est augmentée et pendant la première phase il ne perd pas de carbone puisque l'opération a lieu dans la même installation.

P. KUIN [69] d'une part, pour doser azote et bore dans Si C par activation avec les protons, H. ROMMEL [80] d'autre part, pour déterminer le bore par activation avec les protons et les deutons dans Si et Ge, brûlent leurs échantillons avec un mélange fondant oxydant semblable à celui que nous utilisons pour la séparation simultanée, dans un courant d'oxygène.

En ce qui concerne la séparation seule de l'azote 13, si le métal analysé et le nitrure sont tous les deux solubles dans un hydracide on peut utiliser la méthode classique de KJELDAHL pour séparer quantitativement l'azote 13 sous forme de $\text{N H}_4 \text{ OH}$. Si le nitrure n'est pas soluble dans les acides, on ne séparera que l'azote en solution solide dans le métal. Ph. ALBERT et al. [5] ont proposé l'utilisation de cette méthode de séparation de l'azote 13 en 1953. Ils dosaient en effet le carbone dans le fer par activation avec des deutons.

L'azote 13 peut aussi dans certains cas être séparé quantitativement par fusion réductrice. Bien que le plus souvent cette méthode soit reconnue moins efficace que la fusion oxydante. Néanmoins, pour les matériaux où elle est applicable, on peut envisager alors une séparation simultanée $^{15}\text{O} - ^{13}\text{N}$, avec une installation absolument identique au delà du four, à celle décrite à propos de la fusion oxydante pour séparer simultanément ^{11}C et ^{13}N .

Indiquons enfin que T. NOZAKI et al [81] ont mis au point des méthodes très particulières de séparation du carbone 11 pour doser l'azote dans le graphite par activation avec les protons et le carbone dans le silicium par activation avec les ^3He . Ils ont eu recours à des procédés exclusivement chimiques ne nécessitant pas de fours à générateur HF ou autre.

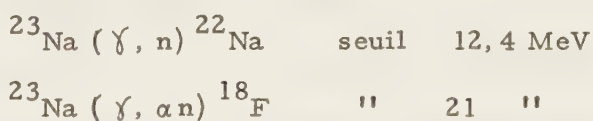
Signalons aussi que G. I. ALEKSANDROVA et al. [50] ont mis au point des méthodes très élaborées pour séparer le fluor 18 du Ge irradié avec des ^3He en vue de doser des traces d'oxygène. Ils obtiennent des coefficients de purification de 10^7 à 10^8 .

F - EXEMPLES D'APPLICATION

I - Généralités

A plusieurs reprises, nous avons fait remarquer qu'il est possible dans des cas très spéciaux de déterminer les éléments légers d'une façon non destructive. C'est ainsi, que nous avons utilisé surtout l'activation avec les photons γ pour doser C, N, O et F d'une façon systématique dans le béryllium de haute pureté, en cours de son élaboration. Nous avons montré comment certaines autres impuretés pouvaient introduire des erreurs en donnant des activités β^+ parasites de périodes voisines, donc indiscernables par mesure des γ d'annihilation des β^+ émis par ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O et ^{18}F [27] [28] [82]. On a montré aussi que l'on pouvait utiliser sous certaines conditions, l'activation avec les photons γ pour doser l'oxygène dans du sodium très pur [83]. L'échantillon est coulé dans une ampoule de pyrex étanche, dont le fond et les parois latérales sont recouverts d'une mince feuille d'aluminium. Après une irradiation de durée maximale 5 minutes, l'ampoule est cassée, la feuille d'aluminium collant au sodium est arrachée, d'où un premier décapage mécanique puisqu'une mince pellicule de sodium adhère à l'aluminium, on enlève ainsi l'alumine ayant pu contaminer l'échantillon pendant sa préparation. L'échantillon est ensuite décapé rapidement dans une solution d'alcool à 10 % d'eau, pesé et mis en comptage.

Mais il y a plusieurs conditions à satisfaire pour que ce dosage non destructif soit possible. D'une part, il faut que l'énergie des photons soit inférieure à 25 MeV environ. Lors de la première partie du présent travail nous avons montré en effet que le sodium pouvait s'activer selon les deux réactions



La première ne produit pas, compte tenu de la période du ^{22}Na (2,62 années) une activité trop gênante. En revanche, la seconde rend des dosages de traces impossibles pour des énergies supérieures à 25 MeV. L'activité en ^{18}F devient trop importante.

D'autre part, la principale impureté du sodium même très pur est le potassium. Or, cet élément donne une activité fort gênante pour doser l'oxygène au moyen de la réaction



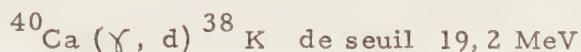
la période du ^{38}K est de 7,7 minutes. L'expérience montre que pour déterminer 1 ppm d'oxygène il faut moins de 10 ppm de potassium.

Un exemple de courbe de décroissance relative à un dosage est donné figure 93.

D. M. HOLM et W. M. SANDERS [84] ont mis au point une méthode de comptage à anticoincidence avec laquelle ils éliminent une partie de l'activité parasite du ^{38}K et du ^{22}Na . Ces deux isotopes sont en effet émetteurs de β^+ et de γ . D'après ces auteurs on gagnerait un facteur 5 environ.

Enfin, il faut que l'intensité du faisceau ne soit pas trop élevée pour éviter que le sodium fonde pendant l'irradiation. L'expérience montre que cette condition est satisfaite en limitant l'intensité à 25 μA moyen. Avec des installations spéciales de refroidissement, on pourrait certainement l'augmenter.

De la même façon, l'oxygène peut être déterminé dans le calcium en activant avec des photons d'énergie inférieure à 22 MeV. Au delà, on a en effet une très importante activation au moyen de la réaction



C. PERSIANI et al [85] ont utilisé aussi l'activation par les photons γ pour déterminer l'oxygène et le carbone dans le césium.

La nécessité d'avoir des teneurs très faibles de potassium dans le sodium pour pouvoir doser l'oxygène d'une façon non destructive par activation avec les photons γ , limite le champ d'application de la méthode. En effet, il faut le préparer spécialement. Ce n'est donc pas celui utilisé d'une façon industrielle et dans lequel on veut surtout connaître la teneur en oxygène. Or, l'immense avantage des méthodes nucléaires

pour déterminer l'oxygène dans des métaux aussi réactifs que le sodium, est que l'on peut, moyennant des précautions spéciales s'affranchir des pollutions. Aussi, avons nous essayé de trouver une méthode d'application plus générale que l'activation avec les photons, dans laquelle, le potassium principale impureté du sodium n'ait plus d'incidence néfaste.

II - Dosage de l'oxygène dans le sodium par activation avec les protons

Dans le tableau XXIII nous avons rassemblé quelques réactions nucléaires à considérer dans la mise au point d'une méthode de dosage de l'oxygène par activation avec des particules chargées dans du sodium.

On voit de suite que les ^3He et les particules α ne sont pas utilisables puisque, le sodium lui-même, donne du ^{18}F à partir d'énergies, pratiquement égales à celles correspondant aux seuils d'activation de l'oxygène.

En principe, on pourrait donc activer avec les p ou les d. Les sensibilités sont du même ordre de grandeur pour les deux types d'activation. En revanche, on sait que les deutons sont réputés d'induire en général de plus grandes activités dans les matériaux irradiés que les protons. De plus, le sodium s'active très fortement pour donner un émetteur particulièrement gênant en radiochimie, le sodium 24, au moyen de la réaction $^{23}\text{Na} (d, p) ^{24}\text{Na}$ de $Q > 0$.

Aussi, avons nous préféré utiliser les protons. L'expérience montre qu'avec ces particules, on peut même doser l'oxygène d'une façon non destructive, pourvu que le sodium soit suffisamment pur. Le potassium, ne gêne en aucune façon si $E_p < 11 \text{ MeV}$.

a) - Préparation des échantillons

Le sodium, dans une installation sous vide très poussé est coulé dans une capsule en aluminium préalablement nettoyée à l'intérieur, dont le fond est relativement mince pour laisser passer les protons.

TABLEAU XXIII

Seuils des principales réactions nucléaires à prendre
en considération dans l'étude du dosage de l'oxygène
dans le sodium par activation avec les particules chargées

Nature des particules chargées	Réactions nucléaires	Seuil en MeV
p	$^{18}\text{O} (p, n) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (p, \alpha d) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (p, ^6\text{Li}) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (p, pn) ^{22}\text{Na}$ $^{23}\text{Na} (p, d) ^{22}\text{Na}$ $^{39}\text{K} (p, pn) ^{38}\text{K}$ $^{39}\text{K} (p, d) ^{38}\text{K}$	 2,6 19,5 18 13 10,6 13,4 11,1
d	$^{16}\text{O} (d, \gamma) ^{18}\text{F}$ $^{17}\text{O} (d, n) ^{18}\text{F}$ $^{18}\text{O} (d, 2n) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (d, \alpha t) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (d, ^7\text{Li}) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (d, dn) ^{22}\text{Na}$ $^{23}\text{Na} (d, t) ^{22}\text{Na}$ $^{23}\text{Na} (d, p) ^{24}\text{Na}$ $^{39}\text{K} (d, dn) ^{38}\text{K}$ $^{39}\text{K} (d, t) ^{38}\text{K}$	 Q > 0 Q > 0 5,2 15,8 13,2 13,5 6,7 Q > 0 13,7 7,2
^3He	$^{16}\text{O} (^3\text{He}, p) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (^3\text{He}, 2\alpha) ^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na} (^3\text{He}, ^8\text{Be}) ^{18}\text{F}$	 Q > 0 0,37 0,45

TABLEAU XXIII (Suite)

Nature des particules chargées	Réactions nucléaires	Seuil en MeV
α	$^{16}\text{O} (\alpha, d) ^{18}\text{F}$	20, 4
	$^{16}\text{O} (\alpha, pn) ^{18}\text{F}$	23, 1
	$^{23}\text{Na} (\alpha, 2 \alpha n) ^{18}\text{F}$	25
	$^{23}\text{Na} (\alpha, ^9\text{Be}) ^{18}\text{F}$	22, 6

Une fois remplie, elle est fermée par un couvercle qui est soudé par bombardement électronique de sorte que la capsule prête à l'irradiation est parfaitement étanche (cf figure 94) quand elle sort de cet appareillage de conditionnement.

Dans un support d'irradiation spécial (cf figure 95), la capsule est irradiée. Ensuite, avec un petit tour de précision on fait sauter le fond arrachant du coup une pellicule de sodium de quelques dixièmes de mm. Au moyen d'un outil à découpe on prélève un échantillon dans la masse du sodium de diamètre supérieur au diaphragme placé devant l'ensemble pendant l'irradiation, de sorte que l'on récupère la zone activée. La face irradiée est ensuite décapée dans une solution d'alcool à 10 % d'eau et l'échantillon mis en comptage si l'analyse est non destructive. Sinon, compte tenu de la période du fluor 18 on peut procéder à la séparation du ^{18}F avant mesure.

Exemple :

Nous avons utilisé des protons de 17 MeV. Le fond de la capsule en aluminium avait une épaisseur de 0,6 mm.

Parcours dans Al des p de 17 MeV	0,430 g cm ⁻²
0,6 mm Al	0,162 "
	0,268 g cm ⁻²

Donc au niveau du sodium l'énergie des p était de 13 MeV. Le poids spécifique du sodium étant de 0,97, 0,268 g cm⁻² correspond à une épaisseur activée d'environ 2,7 mm.

En enlevant de l'ordre de 0,8 mm avant mesure, l'épaisseur analysée est voisine de 1,8 mm et l'énergie correspondante des protons 11 MeV.

b) - Intensité de faisceau maximale admissible
.....

La température de fusion du sodium étant de 98 °C il n'est pas question si l'on souhaite analyser l'échantillon à l'état solide, d'irradier avec des intensités élevées.

Pour déterminer l'intensité maximale admissible, on a irradié une capsule contenant du sodium dans lequel a été placé un thermocouple à une distance de la face d'entrée telle qu'il ne peut être bombardé par le faisceau direct (cf. figure 96). Les températures mesurées à cet endroit en fonction de l'intensité du faisceau pour des protons de 17 MeV soit 13 MeV après avoir traversé la face d'entrée, sont représentées graphiquement figure 97. Il est évident qu'il y a un gradient thermique dans le sodium et que des températures plus élevées doivent exister près de la face d'entrée. Mais cette courbe montre que si le faisceau est régulièrement réparti sur une aire d'environ 1 cm^2 , on peut utiliser des intensités allant jusqu'à $4\text{ }\mu\text{A}$. L'expérience confirme que le sodium ne fond pas dans ces conditions. En revanche, si le faisceau est trop focalisé on provoque une fusion locale. Il n'est d'ailleurs pas exclu qu'avec un système de refroidissement mieux conçu on puisse augmenter encore l'intensité pour s'approcher des $10\text{ }\mu\text{A}$.

La variation de la température au joint de mesure en fonction du temps est celle de la courbe figure 98 pour des protons de 17 MeV et une intensité de faisceau constante de $4\text{ }\mu\text{A}$.

c) - Résultats obtenus et possibilités de la méthode.
.....

Nous avons effectué de nombreux dosages. Le sodium analysé n'était malheureusement pas très pur. Les teneurs trouvées en oxygène s'échelonnaient de 10 à $100\text{ }\mu\text{g/g}$. Nous avons remarqué que l'on pouvait facilement mettre en évidence une période de 20 minutes attribuable au ^{11}C produit à partir du bore et de l'azote. Compte tenu du fait que nous mettions près d'une heure pour préparer l'échantillon à mesurer,

il nous semble que la méthode est aussi utilisable pour déterminer l'azote (en l'absence de bore) d'une façon simultanée avec l'oxygène. Il suffira de concevoir un dispositif avec lequel on pourra récupérer l'échantillon de la capsule en quelques minutes.

D'après les valeurs de sensibilités de détection du tableau XVI la méthode devrait pouvoir permettre de doser d'une façon non destructive environ $0,5 \mu\text{g/g}$ d'oxygène et $0,05 \mu\text{g/g}$ d'azote en activant avec un faisceau d'intensité $4 \mu\text{A}$.

En procédant à une séparation chimique du fluor 18 les teneurs minimales dosables seraient certainement de l'ordre de $0,05$ à $0,1 \mu\text{g/g}$ pour l'oxygène. De même en séparant le ^{11}C on améliore d'un facteur 10 au moins la sensibilité de dosage pratique de l'azote.

Un exemple de courbe de décroissance relative à un dosage non destructif d'oxygène est donné figure 99.

Cette méthode, perfectionnée tant sur le plan du conditionnement des échantillons que sur celui du refroidissement pendant l'activation s'avère ainsi particulièrement intéressante pour doser des traces d'oxygène dans le sodium.

III - Le problème du décapage après irradiation

Systématiquement, quel que soit le moyen d'activation, les échantillons sont décapés au retour de l'irradiation et avant toute séparation chimique ou mesure. On élimine ainsi l'erreur que pourrait introduire la pellicule superficielle d'impuretés existante avant ou formée pendant l'irradiation.

Dans le domaine d'énergie correspondant à l'analyse par activation, on peut considérer que les réactions nucléaires sont du type à noyau composé. Or, on sait que le noyau composé formé subit un recul lors de l'impact du projectile incident. L'énergie de recul du noyau composé E_R est [44]

$$E_R = \frac{m}{m + M} E_i$$

E_i et m énergie cinétique et masse du projectile incident

M masse du noyau cible

Pour des ^3He ou des particules α utilisés pour doser les éléments légers, cette énergie de recul représente une fraction non négligeable de l'énergie incidente.

Le résultat de ce recul est, qu'une partie des noyaux bombardés de la couche superficielle pénètre dans le métal. Cela d'autant plus facilement que son réseau cristallin doit être soumis à de rudes perturbations sous l'effet du bombardement par les particules et que la température macroscopique de l'échantillon peut être assez élevée dans une zone localisée dans le voisinage immédiat de l'axe du faisceau.

Pour déterminer l'influence du recul seul, nous avons irradié un empilement de feuilles d'aluminium d'épaisseur $2\ \mu$ chacune avec des particules α de 42 MeV. On trouve que le recul du fluor 18 dans l'aluminium est de $1,3 \pm 0,3\ \text{mg cm}^{-2}$ (cf. figure 100).

Pour des α de 54 MeV, J. N. BARRANDON et al. [53] de même que N. CHEVARIER et al. [56], trouvent $12\ \mu$ dans le mica soit en prenant $\rho = 2,6$ pour ce composé $3,1\ \text{mg cm}^{-2}$.

Quant à l'épaisseur de la zone de contamination d'un échantillon irradié en vue d'un dosage d'oxygène, nous l'avons mesurée dans le cas du silicium bombardé par des particules α de 42 MeV, pendant 30 minutes avec une intensité de faisceau de $3 \mu\text{A}$. Une machine à abraser spéciale a été utilisée pour enlever sur la face irradiée des couches successives d'environ 2μ d'épaisseur. On a mesuré l'activité en ^{18}F des bandes abrasives correspondantes. Les résultats obtenus sont représentés graphiquement figure 101. Cette courbe montre l'énorme erreur pouvant provenir d'une négligence de décapage. Il n'est pas exclu d'ailleurs que la pénétration du ^{18}F dans le silicium est moindre que ne l'indique la courbe. Il est en effet bien probable que sous l'influence des abrasions successives on repousse systématiquement une partie du milieu contenant les noyaux de ^{18}F dans le silicium.

D'après ces résultats expérimentaux il semblerait que le ^{18}F peut pénétrer de 20μ environ dans le silicium soit $4,8 \text{ mg cm}^{-2}$ avec les conditions expérimentales précitées. K. SAITO et al. [51] utilisant des α de 40 MeV ont trouvé un résultat similaire. Ils indiquent qu'en enlevant 5 mg cm^{-2} de silicium on trouve des teneurs identiques à celles du coeur de l'échantillon. Dans le cas de l'activation du silicium par des ^3He de 10 MeV, G. T. ALEKSANDROVA et al. [50] ont déterminé une profondeur de pénétration de fluor 18 de $3,6 \text{ mg cm}^{-2}$ environ. Pour des ^3He de 14 MeV C. K. KIM [78] trouve des valeurs comprises entre 2,5 et $3,5 \text{ mg cm}^{-2}$. Ces deux dernières séries de résultats ont été obtenus en utilisant des procédés de décapage chimique pour lesquels l'effet de bourrage mentionné précédemment n'existe naturellement pas, ce qui n'exclut pas des contaminations toujours possibles dans ces genres d'expériences.

Tous ces résultats se rapportant au silicium montrent qu'après irradiation il faut enlever au moins 5 mg cm^{-2} pour que le résultat du dosage d'oxygène soit effectivement représentatif de la teneur réelle au sein de l'échantillon.

Cette contamination en profondeur se produit naturellement aussi lorsque l'on veut déterminer d'autres éléments. De plus, il est certain, que l'épaisseur à enlever dépend non seulement de la nature de l'échantillon analysé mais aussi de l'élément à doser. Il faudrait donc normalement déterminer l'épaisseur minimale à enlever dans chaque cas. Pratiquement nous décapons systématiquement une épaisseur voisine de 10 mg cm^{-2} contrôlée par des mesures au micromètre.

Etudiant de plus près ce problème du décapage H. L. ROOK et al [86] ont mis en évidence que pour déterminer des teneurs très faibles d'oxygène dans l'aluminium voisines de $10^{-3} \mu\text{g/g}$, cette opération chimique doit se faire en plusieurs étapes. En effet, ils ont constaté qu'une partie du fluor 18 en solution est adsorbée à la surface de l'échantillon. De sorte qu'il faut prévoir au moins deux décapages successifs, le premier ayant pour objet d'enlever la couche contaminée, le second les atomes actifs adsorbés à la surface du métal consécutivement à la première opération.

En fait, dans tous les dosages nous avons adopté le principe d'un minimum de 3 décapages dans 3 solutions différentes. Etant bien entendu que l'échantillon est soigneusement rincé avant de passer à la suivante.

Dans le cas de l'activation avec les photons, l'effet de recul est moins facile à mettre en évidence dans l'échantillon. Il semble que la profondeur de pénétration est beaucoup moins importante.

Pour essayer de montrer son existence nous avons irradié un empilement de feuilles d'aluminium d'épaisseur $2,4$ chacune, au milieu duquel était placé un matériau riche, en oxygène pour une première expérience, en fluor pour une seconde. Dans les deux cas, on ne trouve des noyaux de recul que sur les feuilles directement en contact avec le matériau émetteur. Un effet directif existe pourtant. Le rapport entre le nombre de noyaux émis vers l'avant dans le sens du faisceau et celui en arrière est voisin de 3 pour l'oxygène 15 et le fluor 18. L'énergie maximale des photons lors de ces expériences était de 35 MeV.

Il nous semble enfin que cet effet de recul est accompagné dans certains cas d'une diffusion particulièrement importante des atomes actifs dans le réseau cristallin du matériau irradié. On a constaté qu'en plaçant une feuille de nickel devant un échantillon de silicium, le tout irradié par des ^3He de 15 MeV, les atomes de ^{61}Cu produits à partir du nickel et projetés dans le réseau du silicium diffusaient de 100 à 200 μ suivant la durée de l'irradiation supérieure à 30 minutes. L'intensité du faisceau était de 2 à 3 μ A.

IV - Détermination de quelques éléments légers dans le silicium

a) - Dosage non destructif de l'oxygène

Comme moniteur de faisceau on a utilisé le mica. Les échantillons ont été irradiés pendant 30 à 60 minutes. Pour calculer les teneurs on a irradié préalablement du Si O_2 . On a tenu compte des différences de parcours dans Si et Si O_2 . Dans le tableau XXIV on trouve une première série de résultats obtenus, d'une part, par spectrométrie de masse, d'autre part, par activation avec des particules α de 42 MeV. Pour les deux premiers échantillons on indique aussi des valeurs déduites de mesures par absorption de l'infra rouge. Les valeurs relatives à l'activation ont été obtenues en faisant la moyenne de plusieurs résultats de dosages successifs sur le même échantillon.

Dans l'ensemble, compte tenu des hétérogénéités toujours possibles, les valeurs déterminées au moyen des deux méthodes concordent d'une façon relativement satisfaisante.

Dans le tableau XXV on donne une autre série de résultats. Comme ci-dessus, chaque échantillon a été analysé plusieurs fois. Mais, lors de chaque dosage on a enlevé une épaisseur comprise entre 50 et 100 μ de silicium et irradié toujours la même face. De sorte que les divers résultats relatifs à un même échantillon concerne des couches analysées différentes. Les valeurs du tableau XXV semblent montrer que l'oxygène n'est pas réparti d'une façon homogène dans l'épaisseur pour certains. On indique aussi quelques résultats obtenus par activation avec les protons. Les énergies indiquées sont celles au niveau de l'échantillon après décapage.

TABLEAU XXIV

Comparaison des résultats de dosage de l'oxygène
par spectrométrie de masse et par activation avec
les particules α [32]

Echantillon de silicium n°	Résultats spectrométrie de masse	Résultats activation	Résultats absorption infra-rouge
1	14,3 $\mu\text{g/g}$	$4,3 \pm 1,7$ $\mu\text{g/g}$	11,4 $\mu\text{g/g}$
2	6,3 "	$3,8 \pm 0,8$ "	5,7 "
3	0,63 "	$2,6 \pm 2$ "	
4	2,3 "	$2,5 \pm 0,6$ "	
5	2 "	$2,7 \pm 0,7$ "	
6	3,1 "	$3,4 \pm 1$ "	
7	1,3 "	$2,4 \pm 1$ "	
8	1 "	$1,6 \pm 0,9$ "	
9	0,9 "	$2,1 \pm 0,8$ "	
10	0,5 "	$1,5 \pm 0,4$ "	

TABLEAU XXV

Divers résultats de dosages d'oxygène par
activation avec les p et les α [33]

Traitement subi par le silicium	α		p	
	O ₂	E α MeV	O ₂	E p MeV
Tirage sous vide	0,8 $\mu\text{g/g}$	35	2,7 $\mu\text{g/g}$	8,5
	0,9 "	37		
	1 "	38,5		
	2 "	38,5		
Fusion par bombardement électronique	0,5 "	36,5		
	0,5 "	38,5		
	1 "	38,5		
Fusion par zone flottante	2,1 "	38,5	1,8 "	9,5
	3,5 "	37		
Fusion par zone flottante	1,2 "	36	4,6 "	14,2
	2,5 "	38,5		
	3,3 "	39		
Fusion par zone flottante	0,2 "	35		
	0,5 "	38,5		
Fusion par zone flottante	1,5 "	38,5		
	1,8 "	38,5		
Cracking de Si H Cl ₄	3 "	38,5	1,8 "	14,2
	3,3 "	38		
	5,5 "	38,5		

On a pu montrer d'autre part que dans un barreau de silicium élaboré par tirage CZOCHRALSKI l'oxygène est réparti d'une façon relativement homogène d'une extrémité à l'autre (cf. figure 102) [87] et que la teneur en oxygène du monocristal ainsi obtenu est très supérieure à celle du produit polycristallin de départ. Par activation avec les ^3He on a en effet trouvé dans ce dernier pour deux essais, des teneurs de 34 et 42 $10^{-3} \mu\text{g/g}$.

b) - Remarque à propos du dosage de traces d'oxygène dans le
.....
silicium par activation avec les particules α .
.....

On sait que le silicium pourrait donner du fluor 18 au moyen des réactions suivantes :

$^{28}\text{Si} (\alpha, ^{14}\text{N}) ^{18}\text{F}$	seuil	26 MeV
$^{29}\text{Si} (\alpha, ^{15}\text{N}) ^{18}\text{F}$	"	23 "
$^{28}\text{Si} (\alpha, 3 \alpha \text{ d}) ^{18}\text{F}$	"	46 "
$^{28}\text{Si} (\alpha, 3 \alpha \text{ pn}) ^{18}\text{F}$	"	49 "

dont l'incidence sur les dosages d'oxygène à des énergies supérieures à 40 MeV a fait l'objet de nombreux travaux de l'équipe de chercheurs dirigée par le Pr. J. TOUSSET [77].

Les échantillons polycristallins dont l'oxygène a été déterminée par activation avec les ^3He furent aussi irradiés par les particules α de 40 MeV. L'intensité de faisceau trop faible ne permettait pas de doser effectivement l'oxygène, mais nous avons pu calculer une limite supérieure égale à 0,05 $\mu\text{g/g}$.

Il semblerait donc bien, que l'on puisse, malgré les 2 réactions compétitives possibles, de seuils inférieures à 40 MeV, doser l'oxygène dans le silicium à des teneurs supérieures à 0,1 $\mu\text{g/g}$, en irradiant l'échantillon avec des α d'énergie maximale 40 MeV.

Signalons, que dans ses études relatives au dosage de l'oxygène dans l'aluminium par activation avec les particules α , M. DEYRIS - BOURBOUZE [88] avait mis en évidence l'existence d'une interférence de la matrice et montré que son importance augmentait très rapidement dans une zone d'énergie voisine du seuil de la réaction $^{27}\text{Al} (\alpha, 3 \alpha n) ^{18}\text{F}$ qui est de 35,6 MeV. Une autre réaction possible pour produire du fluor 18 étant la suivante, $^{27}\text{Al} (\alpha, ^{13}\text{C}) ^{18}\text{F}$ de seuil plus bas, 21,5 MeV.

c) - Dosage du carbone et du fluor par activation avec les photons γ .

Par activation avec des photons γ d'énergie maximale 40 MeV, on n'est pas arrivé à mettre en évidence du fluor dans le silicium précédent. On a estimé que les teneurs de cet halogène sont inférieures à $5 \cdot 10^{-3} \mu\text{g/g}$.

Pour doser le carbone on a irradié avec les échantillons des feuilles minces de graphite recouvrant exactement leur surface de façon que l'échantillon et moniteur soient activés dans les mêmes conditions.

Comme ci-dessus pour l'oxygène, on a pu montrer que le carbone est réparti d'une manière homogène dans un barreau de silicium élaboré par tirage CZOCHRALSKI (cf figure 102) [87]. Pour séparer le ^{11}C après irradiation on a utilisé la méthode de fusion oxydante décrite plus haut. L'azote 13 n'a jamais pu être mis en évidence. Les teneurs en azote semblent inférieures à $0,02 \mu\text{g/g}$ au moins. Les résultats de carbone obtenus montrent d'autre part que le procédé de séparation que nous utilisons semble parfaitement au point sur le plan de la reproductibilité en ce qui concerne le silicium.

d) - Dosage du bore par activation avec les protons.

Le carbone 11 produit au moyen de la réaction $^{11}\text{B} (p, n) ^{11}\text{C}$ est séparé par la même méthode que ci-dessus. Comme moniteur de flux on a ici aussi utilisé du mica. Pour calculer les teneurs, du bore pur a été irradié à plusieurs reprises. On sait qu'il y a une réaction d'interférence possible sur l'azote $^{14}\text{N} (p, \alpha) ^{11}\text{C}$. On admet ici que les teneurs en azote du silicium analysé sont telles que leur influence éventuelle est négligeable. Des irradiations à des énergies de quelques MeV d'une part, ou le bore s'active beaucoup plus que l'azote, avec les photons d'autre

part, semblent confirmer que lors de sa préparation et des traitements qu'il subit l'azote s'échappe du matériau. Il n'empêche que pour les teneurs inférieures à $10^{-3} \mu\text{g/g}$ il peut subsister un doute. Il n'est donc pas exclu que dans ce domaine de concentrations le résultat en bore est en fait dû à la fois aux deux éléments pouvant produire du ^{11}C .

Pour effectuer les dosages, dont les résultats sont rassemblés dans le tableau XXVI on a irradié avec des protons de 15 MeV. L'intensité du faisceau était de $5\mu\text{A}$ environ.

On peut remarquer immédiatement qu'il ne semble pas y avoir une corrélation entre les teneurs trouvées par activation correspondant au bore total dans l'échantillon et les mesures de résistivités. Cela apparaît d'une façon beaucoup plus nette sur la figure 103. La méthode de mesures électriques qui a été utilisée pour déterminer les résistivités est celle dite à 4 points.

D'autre part, ces résultats ont montré qu'il n'y a pas le long du barreau élaboré par tirage CZOCHRALSKI un gradient important de bore, par contre, on a pu voir qu'il y a d'importantes hétérogénéités locales sur une même tranche. Les échantillons 1 et 2 sont polycristallins et les autres concernent deux barreaux monocristallins différents auxquels on a ajouté du bore comme dopant.

V - Autres exemples

a) - Dosage du carbone, de l'azote et de l'oxygène dans du fer et du Nb de très grande pureté.
.....

Les méthodes de séparations chimiques utilisées sont celles que nous avons décrites en E - I et E II. Dans les deux tableaux XXVII et XXVIII contenant respectivement quelques résultats relatifs au fer et au niobium [33] [89], on indique les énergies des particules utilisées. Les dosages d'oxygène par activation avec les ^3He sont non destructifs.

TABLEAU XXVI

Résultats de dosages de bore dans du silicium
par activation avec des protons de 15 MeV [87]

Echantillon n°	Teneur en bore	Résistivité en $\Omega \text{ cm}^{-1}$
	$10^{-3} \mu\text{g/g}$	
1	0,4	
2	0,5	
3	8	102,1
4	9	27,8
5	9	27,04
6	6	25,5
7	8	24,7
8	4	19,78
9	4	19,6
10	5	18,6
11	4	18,6
12	3	18,6
13	4	17,67
14	16	17,62
15	7	17,62
16	5	15,7
17	1,4	15,7
18	3	14,4
19	10	14
20	4	14
21	0,5	14
22	4	14
23	34	5
24	51	5

TABLEAU XXVII

Résultats de dosages de carbone, d'azote et d'oxygène dans du fer de très grande pureté

Nature de l'échantillon	Carbone (γ , n) E max 35 MeV	Azote P 13 MeV	Oxygène	
			(γ , n) E max 35 MeV	^3He 6 MeV
Fe zone fondue n° 1 queue	19 $\mu\text{g/g}$ 38 "		4 $\mu\text{g/g}$ 3, 5 "	
Fe zone fondue n° 2 tête	0, 4 " 0, 5 "	0, 15 $\mu\text{g/g}$		2, 2 $\mu\text{g/g}$ 3, 7 " 4, 4 "
Fe zone fondue n° 2 Queue	6 " 10 "	0, 04 " 0, 06 "		0, 6 " 1, 8 "

TABLEAU XXVIII

Résultats de dosages de carbone, d'azote et d'oxygène dans du niobium de grande pureté

Nature de l'échantillon	Carbone (γ , n) E max 35 MeV	Azote		Oxygène ^3He 9, 5 MeV
		(γ , n) E max 35 MeV	P 13 MeV	
Métal de départ	1, 2 $\mu\text{g/g}$ 1, 5 "	15 $\mu\text{g/g}$		15 $\mu\text{g/g}$ 20 "
Le même après recuit sous vide à 2000 °C	0, 6 "	0, 8 "		0, 6 " 1 2, 9 "
Autre Nb * traité sous vide	18, 5 " 23 "	0, 1 " 0, 6 "	0, 05 g/g 0, 1 " 0, 2 "	

* - On notera la contamination en carbone de cet échantillon provenant de sa mise en forme par laminage avant irradiation.

b) - Remarque à propos du dosage non destructif de l'oxygène
.....
par activation avec les ^3He .
.....

L'existence de la barrière coulombienne d'une part, dont la hauteur est proportionnelle au Z du matériau irradié, le fait que les seuils des réactions nucléaires avec les ^3He sont très bas d'autre part, rend cette particule particulièrement avantageuse pour des dosages non destructifs d'éléments légers dans des métaux lourds, puisque par un choix approprié de l'énergie on peut s'arranger pour que, au delà d'un certain Z les éléments ne soient plus activés, à l'exception de ceux pour lesquels "l'effet tunnel" n'est pas négligeable.

C'est ainsi que A. C. DEMILDT [90] a mis au point le dosage de l'oxygène dans les actinides, d'une façon non destructive, consécutivement aux travaux de S. S. MARKOWITZ et J. D. MAHONY [49] [91] sur l'utilisation des ^3He en analyse par activation.

Or, nous avons vu précédemment qu'il est absolument indispensable de décaper les échantillons après irradiation en enlevant une épaisseur de 5 à 10 mg cm^{-2} . Le parcours des ^3He de 15 MeV varie de 38,6 pour Al à 99,7 mg cm^{-2} pour W. Pour les métaux dont la densité est élevée ce parcours correspond à des profondeurs de pénétration de quelques dizaines de microns. Le contrôle du décapage doit donc être effectué avec une très grande précision, surtout pour les métaux de Z moyen où l'énergie au niveau de l'échantillon après décapage doit être souvent de l'ordre voire inférieure à 10 MeV, c'est à dire dans une zone où l'activation varie rapidement.

c) - Autres résultats
.....

On a utilisé aussi l'activation avec les photons γ , pour déterminer d'une façon systématique, sur un très grand nombre d'échantillons, le fluor dans des dépôts minces de tungstène. La méthode est non destructive et l'expérience montre que l'on peut déterminer simultanément le carbone et l'oxygène. Les teneurs dosables de cette manière, pour ces deux éléments, en irradiant dans un faisceau d'intensité moyenne 50 μA et d'énergie maximale 35 MeV sont de l'ordre de 1 $\mu\text{g/g}$.

Ces dépôts minces de tungstène avaient été obtenus par vaporisation du fluorure WF_6 sur des supports de cuivre ou de molybdène. Ils sont utilisés dans les études des convertisseurs thermoioniques.

La méthode d'activation s'est révélée seule capable de donner rapidement des résultats sûrs. En cas de doute, l'échantillon pouvant en effet être reanalysé, puisque la méthode est non destructive.

De la même façon, on a mis au point une méthode de dosages simultanés de l'oxygène et du carbone contenus dans des couches de Mg Zr à 0,4% de zirconium, corrodées par une atmosphère de CO_2 . Elle est non destructive. On a utilisé des 3He dont l'énergie fut ajustée de sorte que l'on n'active que la couche intéressée dont l'épaisseur était variable de quelques dizaines à quelques centaines de microns. Dans ce dernier cas on avait recours à l'abrasion mécanique pour atteindre les couches successives sans dépasser 10 MeV, au delà, le zirconium s'active de plus en plus d'abord et le magnésium donne du fluor 18 ensuite puisque le seuil de la réaction $^{24}Mg(^3He, 2\alpha)^{18}F$ est à 13,5 MeV seulement. On a ainsi pu, par cette analyse de couche en couche déterminer le gradient de répartition des deux éléments dans les couches successives.

Les teneurs d'oxygène et de carbone qu'il s'agissait de doser s'échelonnaient de $1\mu g/g$ à plusieurs dizaines.

Il semble, qu'il n'existe actuellement aucune autre méthode qui permette de doser l'oxygène d'une façon sûre à des teneurs aussi faibles dans le magnésium et ses alliages.

G - CONCLUSIONS

Nous avons montré qu'il existe pour l'activation par les photons γ une épaisseur optimale qui semble indépendante à la fois de la nature, de l'élément activé par réaction (γ, n) et de celle de la cible. En revanche, elle est fonction de l'énergie des électrons.

Nous avons mis en évidence que l'activation (γ, n) d'un élément derrière diverses cibles, n'augmente pas proportionnellement à Z^2 . Avec une cible de platine ($Z = 78$) elle est à peine 3 fois plus importante pour des électrons de 35 MeV qu'avec une cible en aluminium.

Nous avons déterminé la répartition spatiale du faisceau de photons γ pour des cibles en aluminium et platine irradiées par des électrons de 25 à 45 MeV. Les résultats obtenus montrent que le faisceau est très directif vers l'avant. Cela d'autant plus que le seuil de la réaction est voisin de l'énergie maximale du spectre. La directivité semble dépendre aussi du Z de la cible. Elle augmente légèrement en passant de l'aluminium au platine.

Nous avons déterminé les courbes d'activation (γ, n) en fonction de l'énergie des électrons entre 25 et 42 MeV pour 17 éléments et calculé les sensibilités de détection possibles d'une façon intrinsèque avec un faisceau d'intensité 100 μ A. Pour certains d'entre eux nous avons pu comparer nos résultats expérimentaux à des valeurs calculées théoriquement par G. J. LUTZ [17] et vérifier que l'accord est satisfaisant dans l'ensemble.

Nous avons montré que les principales réactions compétitives pouvant interférer dans les dosages de C, N, O et F ont une importance relative rapidement décroissante en fonction de l'énergie en dessous de 30 MeV et sont déjà pratiquement négligeables à 25 MeV. Il en découle que pour les dosages de traces infimes d'éléments légers par activation (γ, n), l'accélérateur linéaire idéal serait une machine d'énergie maximale 25 à 30 MeV pouvant fournir un faisceau de plusieurs centaines de μ A.

En ce qui concerne l'utilisation des particules chargées, p, d, ^3He et α , pour doser Be, B, C, N, O et F nous avons déterminé de nombreuses courbes donnant l'activation de ces éléments supposés contenus dans un échantillon épais pour lequel le parcours des particules chargées est voisin de celui dans l'aluminium. Nous en avons déduit, d'une part, les sensibilités de détection possibles, d'autre part, l'importance relative des réactions compétitives sur les éléments proches de celui à doser, en fonction de la nature des particules chargées et de leur énergie.

De la comparaison, entre l'activation par les photons γ et les particules chargées p, d, ^3He et α , il ressort que, en se limitant aux seuls éléments légers dosables par les deux moyens C, N, O et F, sur le plan des interférences les photons γ sont de loin les plus intéressants, mais qu'au point de vue sensibilité de détection ce sont les particules chargées qui l'emportent.

D'autre part, en tenant compte à la fois des interférences et des sensibilités de détection, nous avons pu montrer que d'une façon intrinsèque, les deutons sont particulièrement intéressants pour doser le bore, le carbone et l'azote, les ^3He pour l'oxygène, les particules α pour le béryllium et les photons γ pour le fluor.

Dans le domaine des applications, nous avons montré que l'on pouvait doser l'oxygène dans le sodium par activation avec les protons et qu'il est possible de déterminer cet élément de même que le bore ou l'azote d'une façon non destructive dans un échantillon très pur. Enfin, les méthodes décrites dans ce travail ont permis de déterminer des teneurs de bore dans le silicium inférieures à $10^{-3} \mu\text{g/g}$, d'azote dans le fer et le niobium de grandes puretés de quelques $10^{-2} \mu\text{g/g}$.

REFERENCES

- [1] - I. CURIE, F. JOLIOT
Un nouveau type de radioactivité
C.R. Acad. Sc. Paris 198 (1934) 254
- [2] - G. HEVESY, R. HOBBIE
Lead content of rocks
Nature, London, 128 (1931) 1038
- [3] - G. HEVESY, H. LEVI
The action of neutrons on rare earth elements
Kgl. danske Vidensk. Selsk. Math. Phys. Medd. 14 (1936) 5
- [4] - G. T. SEABORG, J. J. LIVINGWOOD
Artificial radioactivity as a test for minute traces of an element
J. Amer. Chem. Soc. 60 (1938) 1784
- [5] - Ph. ALBERT, G. CHAUDRON, P. SUE
Microdosage par voie chimique du carbone dans le fer irradié
par les deutons
Bull. Soc. Chim. Fr 20 (1953) 97
- [6] - P. SUE
Utilisation à des fins analytiques des réactions nucléaires
d, n et d, α sur quelques éléments légers.
C.R. Acad. Sc. Paris 242 (1956) 770
- [7] - R. BASILE, J. HURE, P. LEVEQUE, C. SCHUHL
Possibilités du dosage de l'oxygène par réaction (γ , n) à
l'aide d'un béta-tron
C.R. Acad. Sc. Paris 239 (1954) 422

- [8] - D. B. BEARD, R. G. JOHNSON, W. G. BRADSHAW
Radioactivation of oxygen and carbon in beryllium
L M S D - 5065 20 August 1958
- [9] - Ph. ALBERT, Ch. ENGELMANN, S. MAY, J. F. PETIT
Analyse par activation d'oxygène, de carbone et d'azote au
moyen de la réaction (γ , n)
C. R. Acad. Sc. Paris 254 (1962) 119
- [10] - R. A. GILL
Proton activation analysis in the determination of submicro-
gram amounts of boron in silicon.
AERE C/R 2758 (1958)
- [11] - T. NOZAKI, S. TANAKA, M. FURUKAWA, K. SAITO
Radioactivation Analysis of oxygen in silicon by irradiation
with α particles in a cyclotron
Nature, London, 190 (1961) 39
- [12] - S. S. MARKOWITZ, J. M. HALL
Nuclear reactions induced by ^3He ions
UCRL 8618
- [13] - B. A. THOMPSON
Determination of oxide film thickness by proton activation
Anal. Chem. 33 (1961) 583
- [14] - Ph. ALBERT, M. CUYPERS, A. LESBATS, E. MIGNONSIN
New developments in the systematic analysis of high purity
metals and especially of aluminium, copper and zirconium
Proceedings Int. Conf. Mod. Trends. Act. Anal.
College Station Texas USA (1965)

- [15] - Ph. ALBERT
L'analyse par radioactivation
Gauthier - Villars Paris (1964)
- [16] - Ph. ALBERT
Sur quelques méthodes nucléaires de dosage de l'oxygène
et du carbone à la surface des métaux
Le Vide 141 (1969) 149
- G. AMSEL, D. DAVID
La microanalyse de l'azote par l'observation directe de
réactions nucléaires
Rev. Phys. Appl. 4 (1969) 383
- [17] - G. J. LUTZ
Calculation of sensitivities in photon activation analysis
Anal. Chem. 41 (1969) 424
- [18] - K. D. GEORGE, H. H. KRAMER
Deuterium analysis by photoneutron detection
Nuclear Appl. and Techno. 7 (1969) 385
- [19] - A. VERES, I. PAVLICSEK
Nucléar photoactivation analysis by means of an 80 k Ci ^{60}Co
radiation source
Radioanal. Chem. 3 (1969) 25
- [20] - K. SIEGBAHN
 α , β , γ ray spectroscopy
North Holland, (1965)
- [21] - K. W. KOCH, J. W. MOTZ
Bremsstrahlung cross section formulas and related data
Rev. of Mod. Phys. 31 (1959) 920

J. BERNARD

Etude du rayonnement de freinage. Production de rayons γ
par des accélérateurs d'électrons

Rapport CEA n° 1969 (1961)

W.W. SCOTT

Electron bremsstrahlung differential cross sections for thin
and thick targets

NASA TN D - 2659 (1965)

[22] - O.V. BOGDANKEVICH, F.A. NIKOLAEV

Methods in bremsstrahlung research

Academic Press (1966)

[23] - S. ROLAND, R. BERGERE, R. JOLY, G. VENDRYES

L'accélérateur linéaire d'électrons de 45 MeV du CEN Saclay

BIST 113 (1967) 35

[24] - Ch. ENGELMANN, P. GRAEFF, C. RE

Appareillages utilisés pour l'irradiation d'échantillons
métallurgiques à l'accélérateur linéaire et aux deux cyclotrons
de Saclay.

Proceedings 2nd Conf. Pract. Asp. Act. Anal. with charg.
part. Liège (Belgium) Sept 21 - 22 (1967)

EUR 3896 d - f - e

[25] - L.H. LANZL, A.O. HANSON

Z dependence and angular distribution of bremsstrahlung
from 17 MeV electrons

Phys. Rev. 83 (1951) 959

[26] - M.J. BERGER, S.M. SELTZER

Tables of energy losses and ranges of electrons and positrons

NASA SP - 3012 (1964)

- [27] - Ch. ENGELMANN
Utilisation des particules autres que les neutrons en analyse
par activation
Rapport CEA n° 2559 (1964)
- [28] - Ch. ENGELMANN
Analyse par activation aux photons γ
Rapport CEA n° R 3307 (1967)
- [29] - Ch. ENGELMANN
Analyses de très faibles traces d'éléments légers dans les
matériaux de très haute pureté par activation dans les photons γ
et les particules chargées
Int. J. of Appl. Rad. and Isot. 18 (1967) 569
- [30] - R.J. HOWERTON, D. BRAFF, W.J. CAHILL, N. CHAZAN
Thresholds for gamma induced reactions
UCRL - 14006 (1964)
- [31] - W. SEELMANN - EGGEBERT, G. PFENNIG, H. MUNZEL
Tableau des Nucléides
3ème édition 1968
Inst. Radioch. Karlsruhe.
- [32] - Ch. ENGELMANN, B. FRITZ, J. GOSSET, P. GRAEFF,
M. LOEUILLET.
Sur la détermination de faibles quantités d'oxygène et de car-
bone par activation dans les photons γ et les particules α .
Proceedings 2nd Conf. Pract. Asp. Act. Anal. with charg.
part. Liège (Belgium) Sept. 21 - 22 (1967)
EUR 3896 d - f - e

- [33] - Ch. ENGELMANN, J. GOSSET, M. LOEUILLET,
A. MARSCHAL, P. OSSART, M. BOISSIER
Examples of determination of light elements in various high
purity materials by gamma photons and charged particles
activation.
Proceedings Int. Conf. Modern Trends in activation analysis
Gaithersburg, Maryland Oct. 7 - 11 (1968)
US Dept of Commerce, N B S Special publication 312
- [34] - J. B. MARION, F.C. YOUNG
Nuclear reaction analysis. Graphs and tables
North - Holland (1968)
- [35] - Y. OKA, T. KATO, I. NAGAI
Photoactivation of rare earth elements with 20 MeV
bremsstrahlung
J. of Nuclear Science and Techn. 4 (1967) 300
- [36] - A. OWLYA, R. ABDEYAZDAN, Ph. ALBERT
Sur l'étude des possibilités d'analyses de terres rares par
irradiation dans les photons γ de haute énergie.
Proceedings 2nd Conf. Pract. Asp. Act. Anal. with charg.
Part. Liège (Belgium) Sept. 21 - 22 (1967)
EUR 3896 d- f - e
- [37] - E. SCHWEIKERT, Ph. ALBERT
Nouvelles expériences sur l'analyse par radioactivation dans
les photons γ de 18 à 27 MeV
Proceedings, Symposium "Radiochemical methods of analysis"
19 - 23 Oct. Salzburg (1964) , édité par
I.A.E.A. Vienne, 1965
- [38] - J. L. DEBRUN
Etude du dosage de quelques éléments par activation dans les
particules chargées et les photons de 35 MeV. Détermination
des impuretés du chrome par activation dans les neutrons
thermiques
Thèse, Orsay (1969)

- [39] - J.L. DEBRUN, Ph. ALBERT
Irradiation de quelques éléments naturels dans les photons
de 35 MeV, applications en analyse par activation
Bull. Soc. Chim. Fr. 3 (1969) 1020
- [40] - Y. OKA, T. KATO, K. NOMURA, T. SAITO
The yields of radioactivities induced by (γ , n) reactions with
20 MeV bremsstrahlung
Bull. Chem. Soc. of Japan 40 (1967) 575
- [41] - C.A. BAKER
Gamma activation analysis
Analyst 92 (1967) 601
- [42] - C.F. WILLIAMSON, J. P. BOUJOT, J. PICARD
Tables of range and stopping power of chemical elements
for charged particles of energy 0,05 to 500 MeV
Rapport CEA R 3042 (1966)
- [43] - G. FRIEDLANDER, J. W. KENNEDY
Chimie Nucléaire et Radiochimie
Dunod Paris (1960)
- [44] - M. LEFORT
La Chimie Nucléaire
Dunod Paris (1966)
- [45] - S. AMIEL, A. NIR
Analysis of ^{18}O based on the reaction $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$
Proceedings, Symposium IAEA
"Radiochemical methods of analysis"
19 - 23 Oct. Salzburg (1964)
Edité par I.A.E.A., Vienne, 1965

- [46] - D.C. AUMANN, H. J. BORN
Determination of ^{18}O abundance in hydrogen containing
substances by neutron irradiation
Proceedings, Symposium IAEA
"Radiochemical methods of analysis"
19 - 23 Oct. Salzburg (1964)
Edité par I.A.E.A., Vienne, 1965
- [47] - A. A. SMALES
Radioactivation analysis
Ann. Reports Chem. Soc. 46 (1949) 285
- [48] - R. G. OSMOND, A. A. SMALES
The determination by radioactivation of the oxygen content
of powdered metals with particular reference to beryllium
Anal. Chim. Acta 10 (1954) 117
- P. T. WILKNISS, H. J. BORN
Aktivierungsanalytische Sauerstoff bestimmung in der
Oberfläche von Festkörpern
Int. J. of Appl. Rad. and Isot. 18 (1967) 57
- J. J. M. de GOEIJ, J. P. W. HOUTMAN
Some aspects of the oxygen determination by the $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n})^{18}\text{F}$
reaction.
Proceedings 2nd Conf. Pract. Asp. Act. Anal. with charg.
Part. Liège (Belgium)
Sept. 21 - 22 (1967) EUR 3896 d - f - e
- [49] - J. D. MAHONY
Reactions of ^3He with light elements
Applications to activation analysis
UCRL 11780 (1965)

- [50] - G.I. ALEKSANDROVA, A. M. DEMIDOV, G. A. KOTELNIKOV,
G. P. PLASHAKOVA, G. V. SUKHOV, D. Y. CHOPOROV,
G. I. SHMANENKOVA
Determination of oxygen content in germanium and silicon
by activation with ^3He ions
Soviet Atomic Energy 23 (1967) 787
- [51] - K. SAITO, T. NOZAKI, S. TANAKA, M. FURUKAWA
HWASHENG CHENG
Radioactivation analysis of oxygen in high purity silicon by
irradiation with α particles
Int. J. of Appl. Rad. and Isot. 14 (1963) 357
- [52] - E. RICCI, R. L. HAHN
Theory and experiment in rapid, sensitive helium 3 activation
analysis
Anal. Chem. 37 (1965) 742
- [53] - J. N. BARRANDON, J. L. DEBRUN, Ph. ALBERT
Dosage de faibles teneurs d'oxygène dans le fer, le nickel,
le chrome, par activation dans les particules α
Proceedings 2nd Conf. Pract. Asp. Act. Anal. with charg.
part. Liège (Belgium) Sept 21 - 22 (1967)
EUR 3896 d - f - e
- [54] - J. GIROUX, J. P. THOMAS, M. D. TRAN, J. TOUSSET
Influence of energy distribution and straggling in charged
particle activation analysis.
Proceedings, Intern. Conf. on the use of Cyclot. in Chem.
Metall. and biology, Oxford (1969)

- [55] - Ch. ENGELMANN
Sur l'utilisation des particules α pour le dosage de l'oxygène
et du carbone
C.R. Acad. Sc. Paris 258 (1964) 4279
- Ch. ENGELMANN
Analyse par activation aux particules chargées α et p, de
quelques éléments légers dans divers matériaux
Proceedings, Symposium IAEA
"Radiochemical methods of analysis"
19 - 23 Oct. Salzburg (1964)
Edité par I.A.E.A., Vienne, 1965
- [56] - N. CHEVARIER, J. GIROUX, M.D. TRAN, J. TOUSSET
Contribution à l'analyse par activation avec particules chargées
Bull. Soc. Chim. Fr. 8 (1967) 2893
- [57] - H. L. ROOK, E.A. SCHWEIKERT
Ultra- trace determination of oxygen and carbon by charged
particle activation analysis
Anal. Chem. 41 (1969) 958
- H. L. ROOK, E.A. SCHWEIKERT, R. E. WAINERDI
Range transformation of activation curves and their application
to quantitative charged particle activation analysis
Proceedings Int. Conf. Modern. Trends in activation analysis
Gaithersburg, Maryland
Oct. 7 - 11 (1968)
US Dept. of Commerce, N.B.S. Special Publication 312
- [58] - A. B. WHITEHEAD, J.S. FOSTER
Activation cross sections for
 ^{12}C (p, pn) ^{11}C , ^{16}O (p, α) ^{13}N and ^{19}F (p, pn) ^{18}F
Can. J. Phys. 36 (1958) 1276

H.A. HILL, E.L. HAASE, D.B. KNUDSEN
High resolution measurements of the $^{16}\text{O}(\text{p}, \alpha)^{13}\text{N}$
excitation function.
Phys. Rev. 123 (1961) 1301

- [59] - R.J. HOWERTON, D. BRAFF, W.J. CAHILL, N. CHAZAN
Thresholds for proton induced reactions
UCRL 14001 (1964)
- [60] - R.E. BATZEL, W.W.T. CRANE, G.D. O'KELLEY
The excitation function for the $^{27}\text{Al}(\text{d}, \text{p})^{24}\text{Na}$ reaction
Phys. Rev. 91 (1953) 939
- [61] - N.N. KRASNOV, P.P. DIMITRIYEV, S.P. DIMITRIYEVA
I.O. KONSTANTINOV, G.A. MOLIN
Experimental data on the yields of ^{11}C , ^{13}N , ^{18}F isotopes
used for the detection of carbon, nitrogen, oxygen and
neighbouring light elements impurities by means of activation
analysis with different charged particles (p , d , ^3He , α)
Proceedings, Intern. Conf. on the use of Cyclot. in Chem.
Metall. and biology Oxford (1969)
- [62] - R.J. HOWERTON, D.L. BRAFF, W.J. CAHILL, N. CHAZAN
Thresholds for deuteron induced reactions
U C R L 14002 (1964)
- [63] - R.J. HOWERTON, D.L. BRAFF, W.J. CAHILL, N. CHAZAN
Thresholds for ^3He induced reactions
U C R L 14004 (1964)

- [64] - R. J. HOWERTON, D. L. BRAFF, W. J. CAHILL, N. CHAZAN
Thresholds for ^4He induced reactions
UCRL 14005 (1964)
- [65] - M. D. TRAN, A. CHENAUD, H. GIRON, J. TOUSSET
Cross sections of ^{18}F formation by deuteron bombardement
of oxygen and fluorine. Applications to oxygen analysis
Proceedings Int. Conf. Modern Trends in activation analysis.
Gaithersburg, Maryland Oct. 7 - 11 (1968)
U.S. Dept. of Commerce, N.B.S. Special Publication 312
- [66] - J. L. DEBRUN, J. N. BARRANDON, Ph. ALBERT
Contribution to activation analysis by charged particles.
Determination of carbon and oxygen in pure metals. Possibilities
of sulphur determination.
Proceedings Int. Conf. Modern Trends in activation analysis.
Gaithersburg, Maryland
Oct. 7 - 11 (1968)
- J. L. DEBRUN, J. N. BARRANDON, Ph. ALBERT
Analyse par activation dans les particules alpha et les hélions
trois. Dosage de traces d'oxygène dans le fer, le nickel et le
chrome de haute pureté.
Contribution à l'étude du dosage du carbone
Bull. Soc. Chim. Fr. 3 (1969) 1011
- [67] - E. RICCI, R. L. HAHN
Sensitivities for activation analysis of 15 light elements with
18 MeV helium 3 particles
Anal. Chem. 39 (1967) 794
- E. RICCI, R. L. HAHN
Present status of the ^3He activation analysis programat ORNL
Proceedings 2nd Conf. Pract. Asp. Act. Anal. with charg.
Part. Liège (Belgium) Sept 21 - 22 (1967)
EUR 3896 d - f - e

- [68] - E. RICCI, R.L. HAHN
Rapid calculation of sensitivities, interferences, and optimum
bombarding energies in ^3He activation analysis
Anal. Chem. 40 (1968) 54
- [69] - P. KUIN
The determination of nitrogen and boron in silicon carbide
by means of proton activation analysis
Proceedings 2nd Conf. Pract. Asp. Act. Anal. with charg.
Part. Liège (Belgium) Sept 21 - 22 (1967)
EUR 3896 d - f - e
- [70] - M. J. LACROIX, M.D. TRAN, J. TOUSSET
Tracé de la fonction d'excitation de la réaction $^{16}\text{O}(\text{d}, \text{n})^{17}\text{F}$
jusqu'à 27 MeV et discussion de son utilisation en vue du
dosage de l'oxygène
Proceedings 2nd Conf. Pract. Asp. Act. Anal. with charg.
Part. Liège (Belgium) Sept 21 - 22 (1967)
EUR 3896 d - f - e
- [71] - E. SCHUSTER, K. WOHLLEBEN
Bestimmung von leichten Elementen in Silicium und Selen durch
Ionenaktivierungsanalyse
Z. Anal. Chem. 245 (1969) 239
- [72] - K. WOHLLEBEN, E. SCHUSTER
Aktivierungsanalyse mit deutronen
Der totale Wirkungsquerschnitt der Reaktionen $^{10}\text{B}(\text{d}, \text{n})^{11}\text{C}$
 $^{14}\text{N}(\text{d}, \text{n})^{15}\text{O}$ und $^{16}\text{O}(\text{d}, \text{n})^{17}\text{F}$ bis 3,2 MeV
Radiochimica Acta 12 (1969) 75

K. WOHLLEBEN, E. SCHUSTER

Der totale Wirkungs querschnitt der Reaktion $^{12}\text{C}(\text{d}, \text{n})^{13}\text{N}$

für Deuteronen von 0,4 bis 3,0 MeV

Radiochimica Acta 8 (1967) 78

- [73] - P. BOILLOT, R. BOULIN, E. JAUDON
Dosage de l'azote dans les métaux par fusion oxydante
Chimie Analytique 47 (1965)
- [74] - A. MARSCHAL
Contribution à l'étude du dosage du carbone et de l'azote
par activation par les photons γ et les particules chargées
Rapport interne SRMPC / 5032 (1969)
- [75] - C.A. BAKER, A.G. PRATCHETT, D.R. WILLIAMS
Photon activation analysis using the electron linear accelerator
at Harwell
AERE - R 5363 (1967)
- [76] - Ph. ALBERT
L'analyse par activation aux photons γ et particules chargées
Chimia 21 (1967) 32
- [77] - J. GIROUX, J.P. THOMAS
Communication personnelle

J. GIROUX
Dosage de l'oxygène dans le silicium
LYCEN 6930
- [78] - C.K. KIM
Oxygen content of gallium phosphide, silicon and germanium
by helium 3 activation
Radioanal. Letters 2/2 (1969) 53

- [79] - G. REVEL
Dosage du carbone dans quelques métaux purs par irradiation dans les photons γ .
Radioanal. Chem. 3 (1969) 421
- [80] - H. ROMMEL
Zur Borbestimmung in Silizium und Germanium durch aktivierung mit Protonen und Deuteronen
Anal. Chim. Acta 34 (1966) 427
- [81] - T. NOZAKI, T. OKUO, H. AKUTSU, M. FURUKAWA
The radioactivation analysis of semi conductor graphite for nitrogen by the $^{14}\text{N}(\text{p}, \alpha)^{11}\text{C}$ reaction
Bull. Chem. Soc. Jap. 39 (1966) 2685
- T. NOZAKI, Y. YATSURUGI, N. AKIYAMA, I. IMAI
Charged particle activation analysis for carbon, nitrogen and oxygen in semi conductor silicon
Proceedings Int. Conf. Modern Trends in activation analysis Gaithersburg Maryland Oct.7 - 11 (1968)
U.S. Dept. of Commerce, N.B.S. Special Publication 312
- T. NOZAKI, Y. YATSURUGI, N. AKIYAMA
Charged particle activation analysis for carbon, nitrogen and oxygen in semi conductor silicon
Radioanal. Chem. 4 (1970) 87
- [82] - Ch. ENGELMANN
Dosage de l'oxygène, du carbone, de l'azote et de quelques autres impuretés dans le béryllium, le calcium, le sodium et le bore par activation aux rayons γ
Proceedings, Symposium IAEA "Radiochemical methods of analysis" Salzburg
19 - 23 Oct. (1964)
Publié par I.A.E.A., Vienne, 1965

- [83] - Ch. ENGELMANN, M. LOEUILLET
Sur le dosage non destructif de faibles quantités d'oxygène par
activation aux photons γ dans du sodium de très haute pureté
Bull. Soc. Chim. Fr. 2 (1969) 680
- [84] - D. M. HOLM, W. M. SANDERS
Reduction of interferences in gamma activation
Proceedings, Society for Applied Spectroscopy
June (1966)
- [85] - C. PERSIANI, J. SPIRA, R. BASTIAN
Photon activation analysis of caesium
Talanta 14 (1967) 565
- [86] - H. L. ROOK, E. A. SCHWEIKERT, R. E. WAINERDI
Study of the chemical etching procedure used to remove
surface oxygen contamination in charged particle activation
analysis
Anal. Chem. 40 (1968) 1194
- [87] - Ch. ENGELMANN, J. M. RIGAUD
Détermination de quelques éléments légers, principalement
B, C, et O dans le silicium par activation avec les particules
chargées et les photons γ .
Publication à paraître dans Radioanal. Chem.
- [88] - M. DEYRIS BOURBOUZE
Dosages d'éléments par leur radioisotopes de période courte
dans l'analyse de l'aluminium de très haute pureté
Thèse Paris (1966)
- [89] - M. BOISSIER, J. GOSSET
Dosage du carbone et de l'azote par activation dans du fer et
du niobium de très grande pureté
Rapport interne SRMPC 5103 (1969)

- [90] - A.C. DEMILDT
Microactivation analysis of oxygen in the actinide metals
Anal. Chem. 35 (1963) 1228
- [91] - S.S. MARKOWITZ, J.D. MAHONY
Activation analysis for oxygen and other elements by means
of ^3He induced nuclear reactions
UCRL 9908 (1961)

Manuscrit reçu le 9 juillet 1970

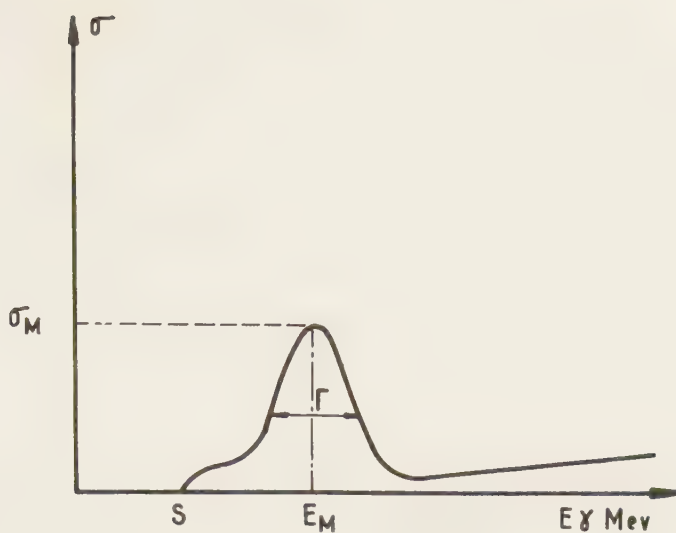


Fig. 1

Forme caractéristique de la résonance géante d'une réaction (γ, n)

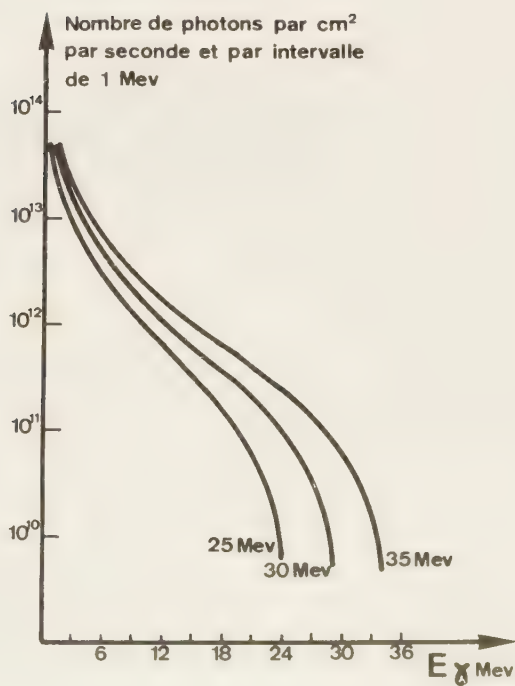


Fig. 2

Spectre du rayonnement de freinage pour des électrons de 25, 30 et 35 MeV bombardant une cible en tungstène, d'après G. J. LUTZ [17]. Intensité du faisceau 100 μ A moyen.

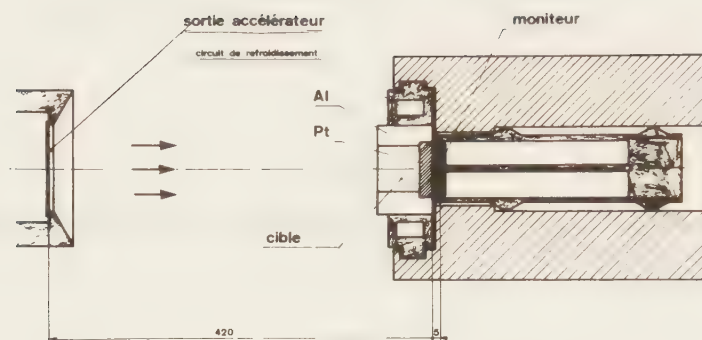


Fig. 3

Disposition relative sortie de l'accélérateur - cible
moniteur pour déterminer l'influence de l'épaisseur
de la cible et de sa nature sur les activités induites.

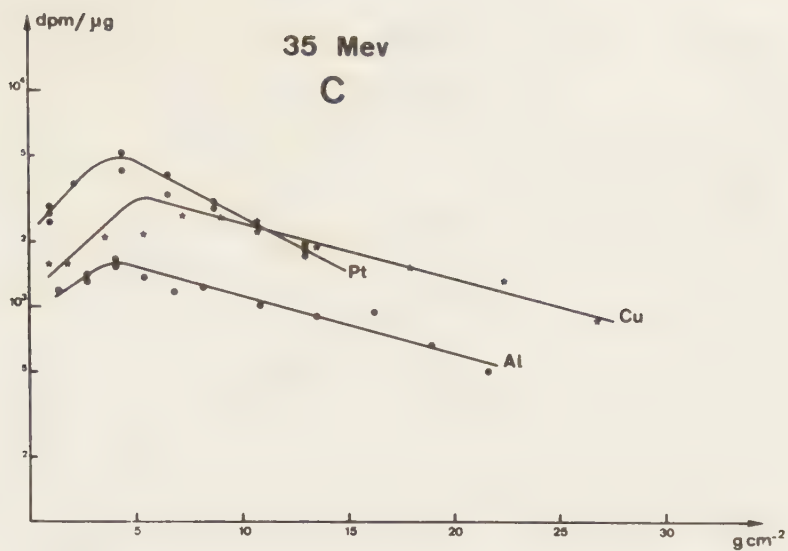


Fig. 4

Influence de l'épaisseur de la cible et de sa nature sur l'activation des moniteurs de C de $\varnothing$ 2 mm, à 35 MeV

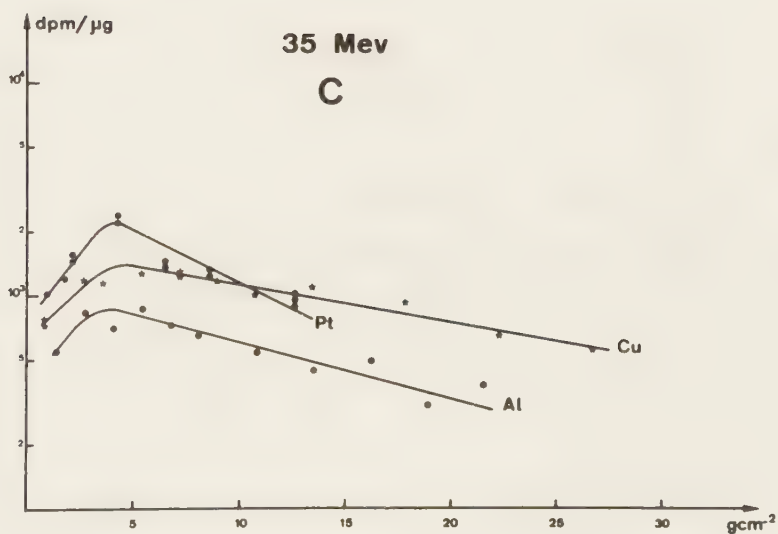


Fig. 5

Influence de l'épaisseur de la cible et de sa nature sur l'activation des moniteurs de C de $\varnothing$ 20 mm, à 35 MeV

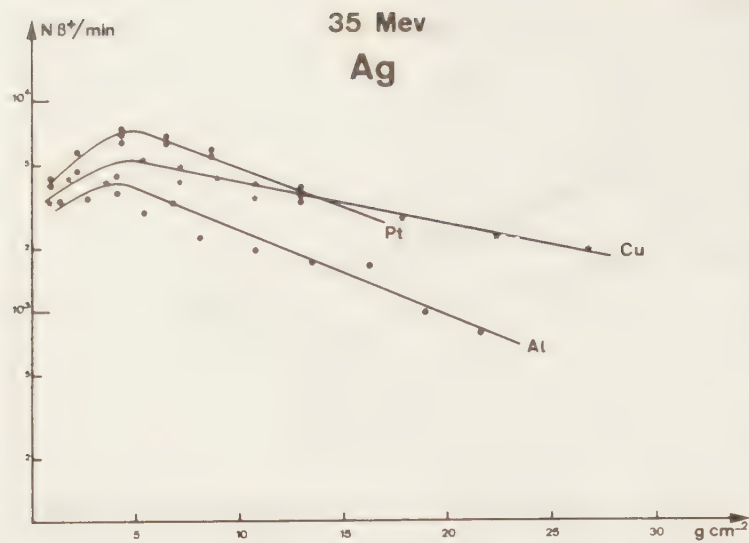


Fig. 6

Influence de l'épaisseur de la cible et de sa nature
sur l'activation des moniteurs d'argent de $\varnothing 2\ mm$
à 35 MeV

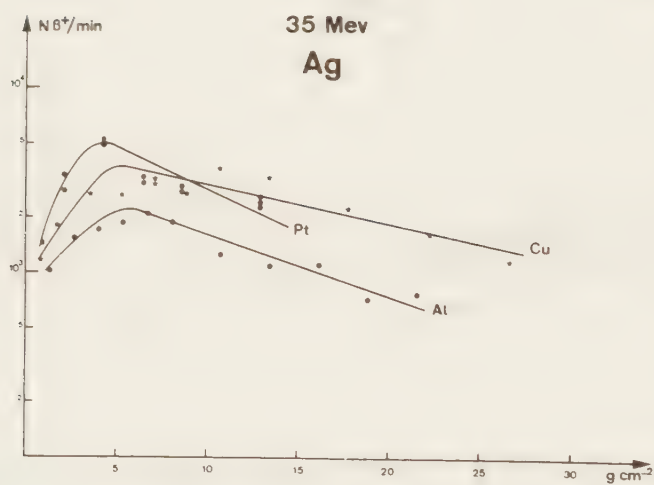


Fig. 7

Influence de l'épaisseur de la cible et de sa nature
sur l'activation des moniteurs d'argent de $\varnothing 20\ mm$
à 35 MeV

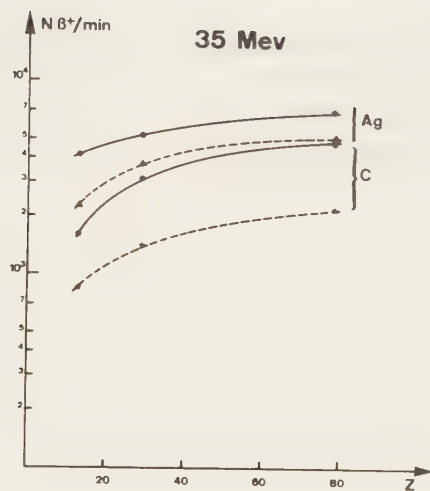


Fig. 8

Variation en fonction du Z de la cible de
l'activation du carbone et de l'argent à
35 MeV

———— moniteur ϕ 2 mm
----- " ϕ 20 mm

Fig. 9

Variation en fonction de l'épaisseur de la cible de platine de l'activation des moniteurs de carbone de $\varnothing$ 2 mm, pour des énergies des électrons de 25, 30, 40 et 45 MeV.

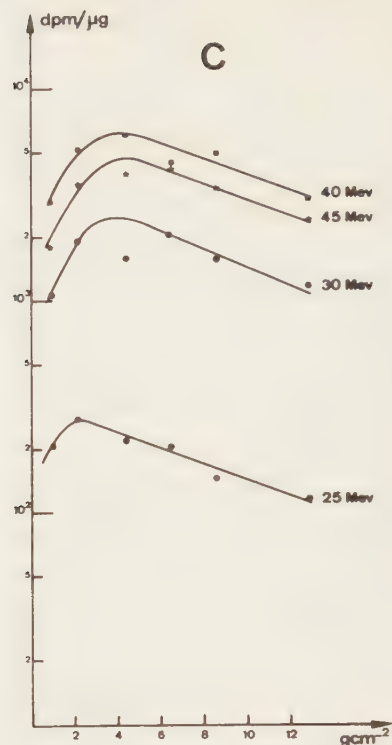


Fig. 10

Variation en fonction de l'épaisseur de la cible de platine de l'activation des moniteurs de carbone $\varnothing$ 20 mm, pour des énergies des électrons de 25, 30, 40 et 45 MeV.

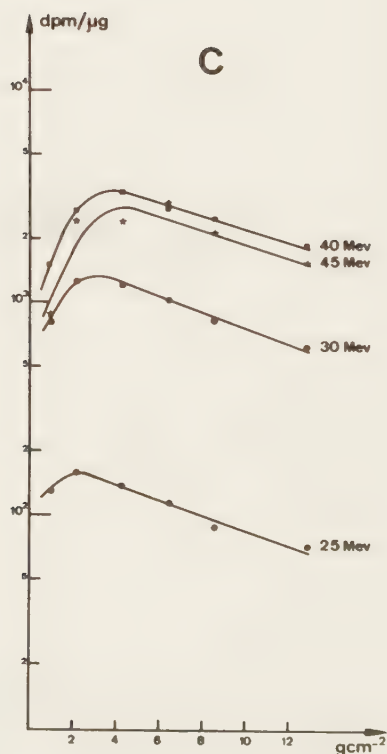


Fig. 11

Variation en fonction de l'épaisseur de la cible de platine de l'activation des moniteurs d'argent de $\varnothing$ 2mm, pour des énergies des électrons de 25, 30, 40 et 45 MeV.

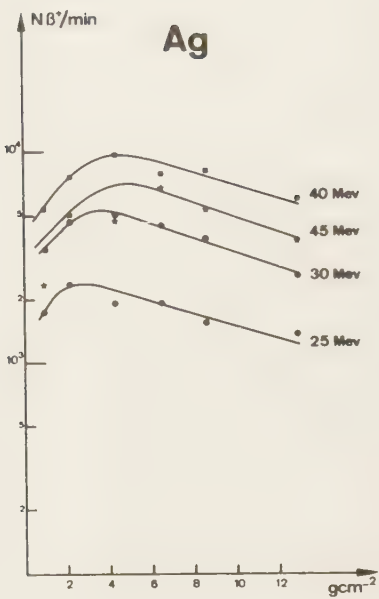
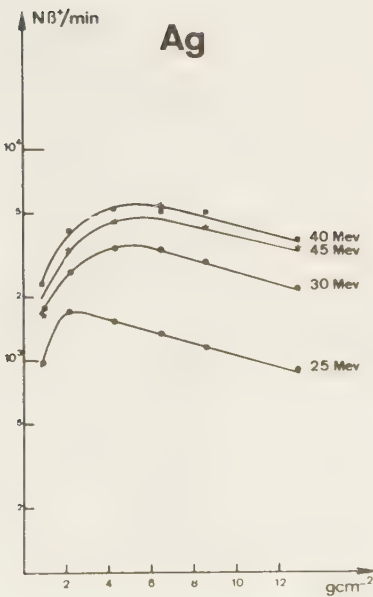


Fig. 12

Variation en fonction de l'épaisseur de la cible de platine de l'activation des moniteurs d'argent de $\varnothing$ 20 mm, pour des énergies des électrons de 25, 30, 40 et 45 MeV.



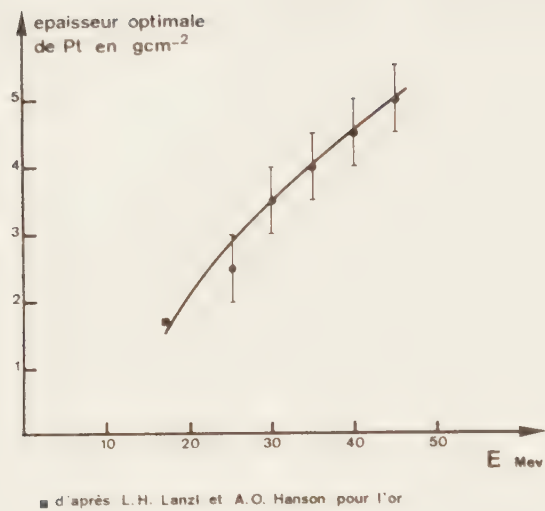


Fig. 13

Variation de l'épaisseur optimale de platine en fonction de l'énergie des électrons dans le cas de l'activation du carbone et de l'argent.

graphite
épaisseur 1 mm

argent
épaisseur 10 μ

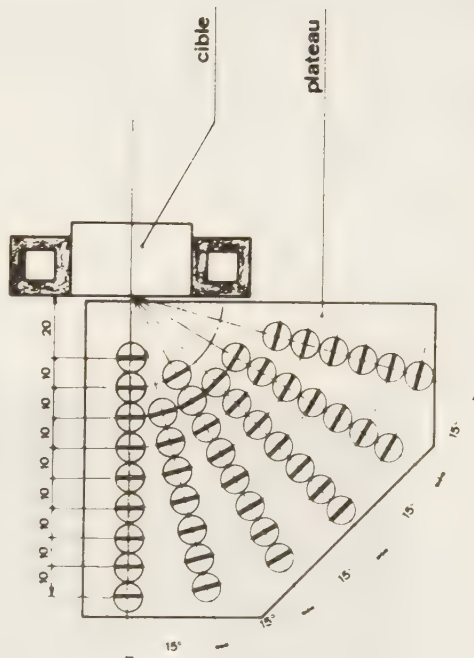
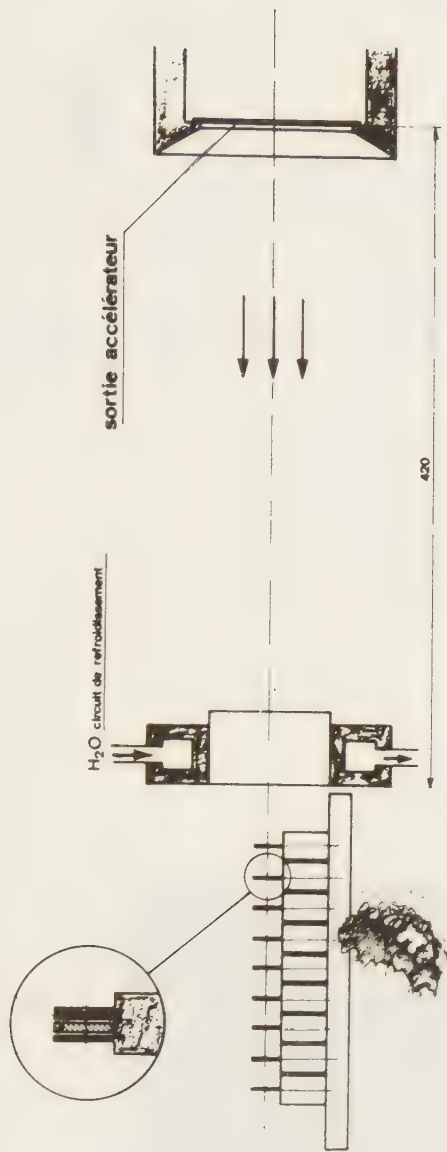


Fig. 14

Dispositif utilisé pour déterminer la répartition du faisceau de photons γ au moyen de moniteurs d'activation en carbone et argent dans le voisinage de la cible $2 \text{ cm} \leq d \leq 10 \text{ cm}$.

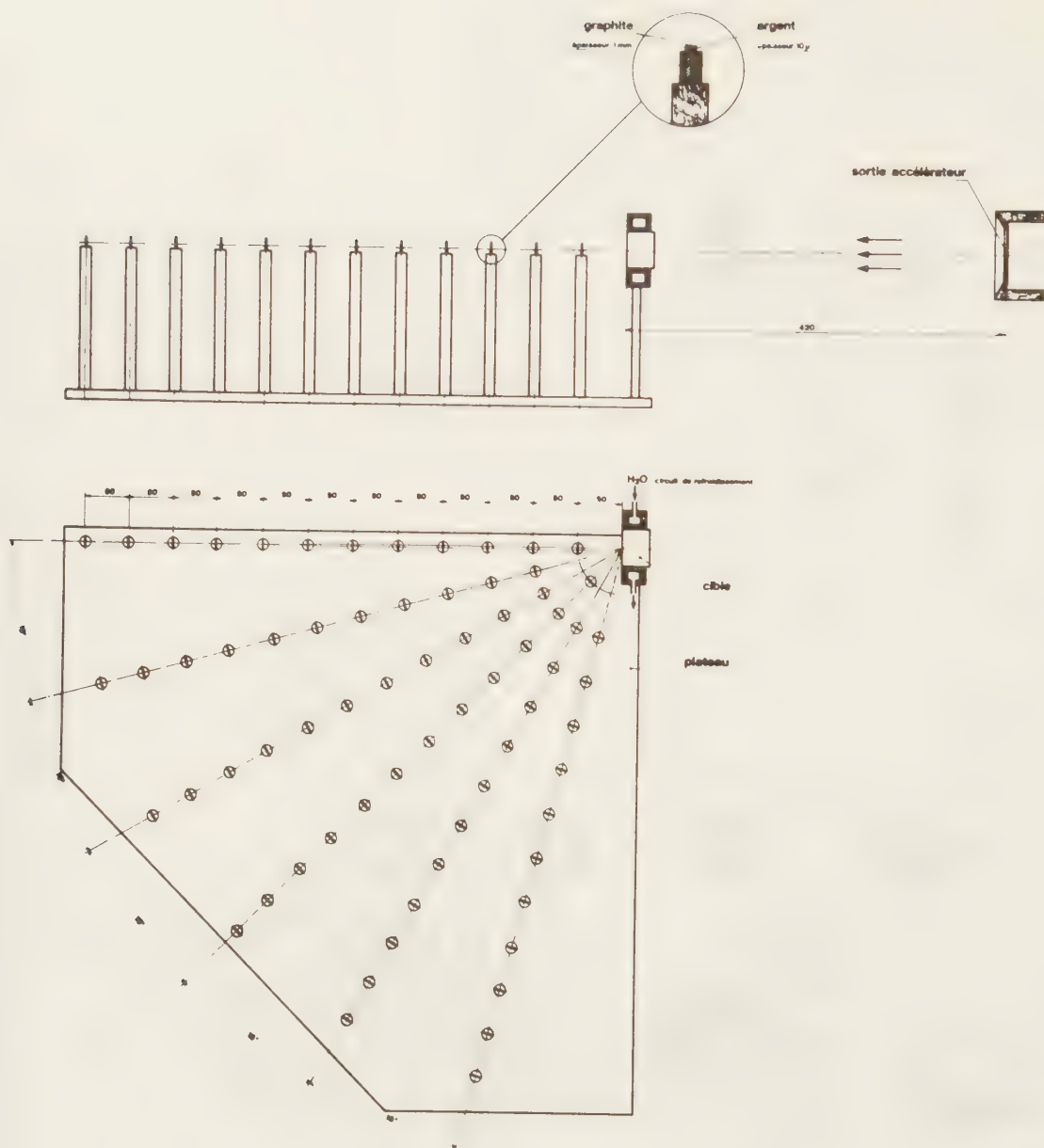


Fig. 15

Dispositif utilisé pour déterminer la répartition du faisceau de photons au moyen de moniteurs d'activation en carbone et argent derrière la cible aux grandes distances $5 \text{ cm} \leq d \leq 60 \text{ cm}$.

Fig. 16

Photographie du dispositif schématiquement représenté figure 14.



Fig. 17

Photographie du dispositif schématiquement représenté figure 15.

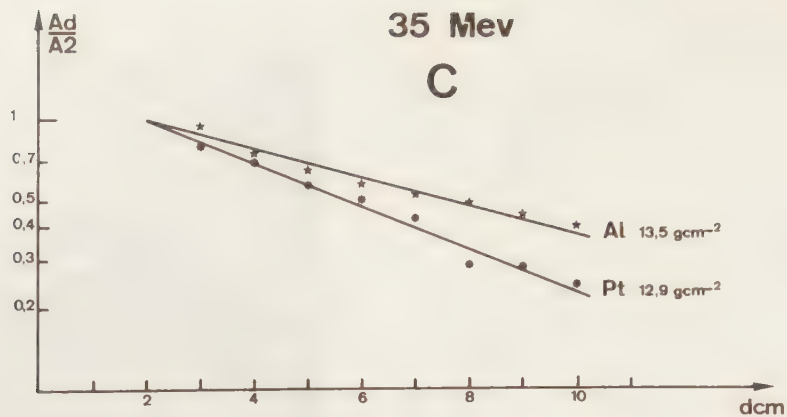


Fig. 18

Gradient longitudinal dans l'axe du faisceau pour l'activation du carbone avec respectivement une cible d'aluminium et de platine. Energie des électrons 35 MeV

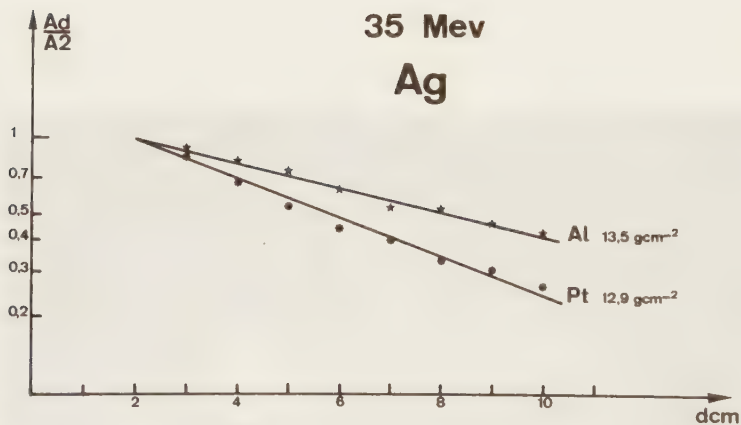


Fig. 19

Gradient longitudinal dans l'axe du faisceau pour l'activation de l'argent avec respectivement une cible d'aluminium et de platine. Energie des électrons 35 MeV.

Fig. 20

Gradient transversal à 35 MeV pour l'activation du carbone et de l'argent à des distances de 4 et 7 cm derrière la cible en platine.

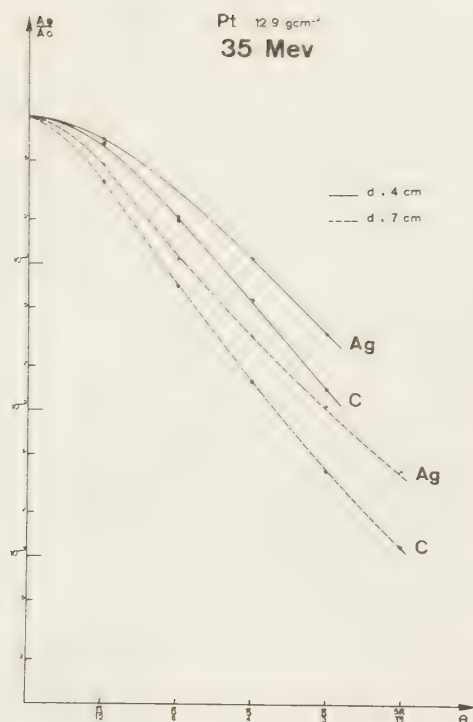
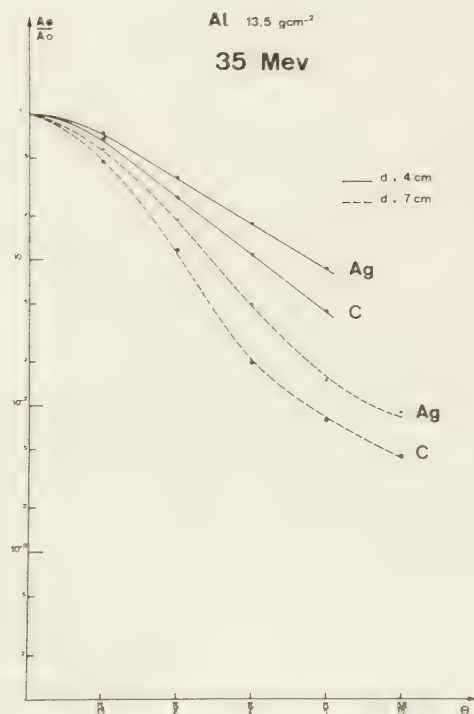


Fig. 21

Gradient transversal à 35 MeV pour l'activation du carbone et de l'argent à des distances de 4 et 7 cm derrière la cible en aluminium.



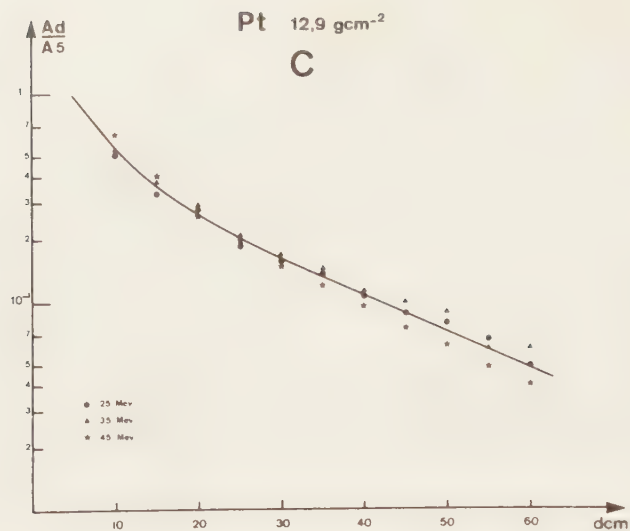


Fig. 22

Gradient longitudinal dans l'axe du faisceau pour l'activation du carbone avec une cible en platine. Energies des électrons 25, 35 et 45 MeV.

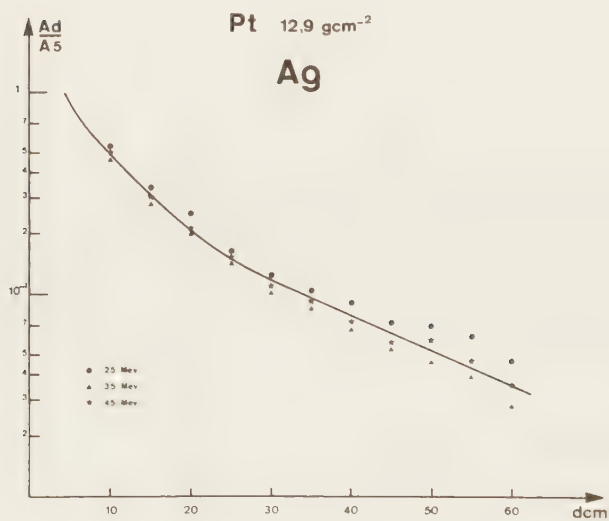


Fig. 23

Gradient longitudinal dans l'axe du faisceau pour l'activation de l'argent avec une cible en platine. Energies des électrons 25, 35 et 45 MeV.

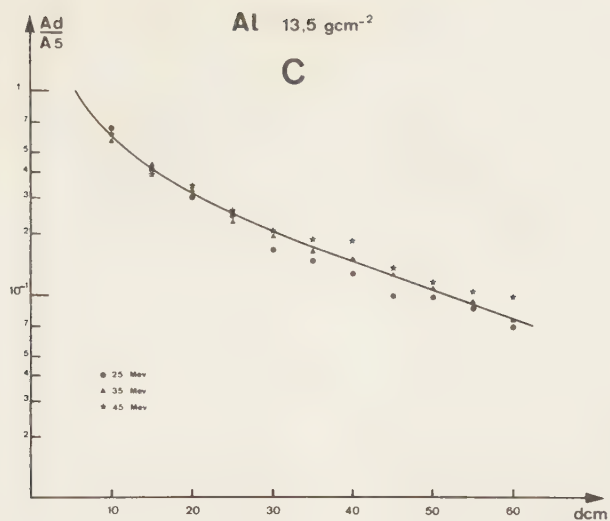


Fig. 24

Gradient longitudinal dans l'axe du faisceau pour l'activation du carbone avec une cible en aluminium. Energies des électrons 25, 35, et 45 MeV.

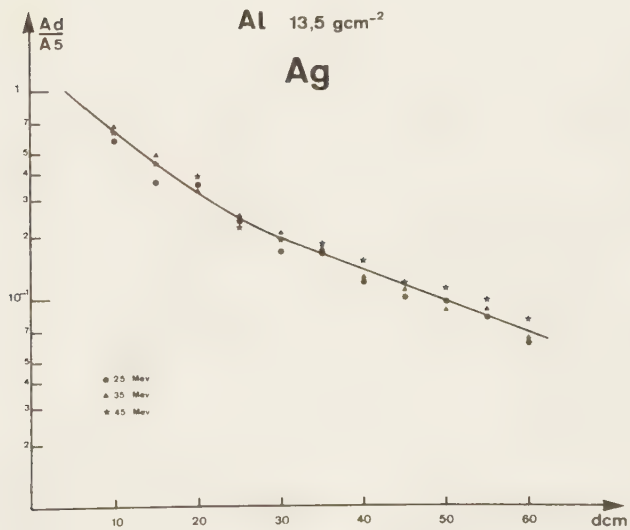


Fig. 25

Gradient longitudinal dans l'axe du faisceau pour l'activation de l'argent avec une cible en aluminium. Energies des électrons 25, 35 et 45 MeV.

Fig. 26

Gradient transversal pour l'activation du carbone et de l'argent à 10 cm derrière la cible de platine pour des énergies du faisceau d'électrons de 25, 35 et 45 MeV

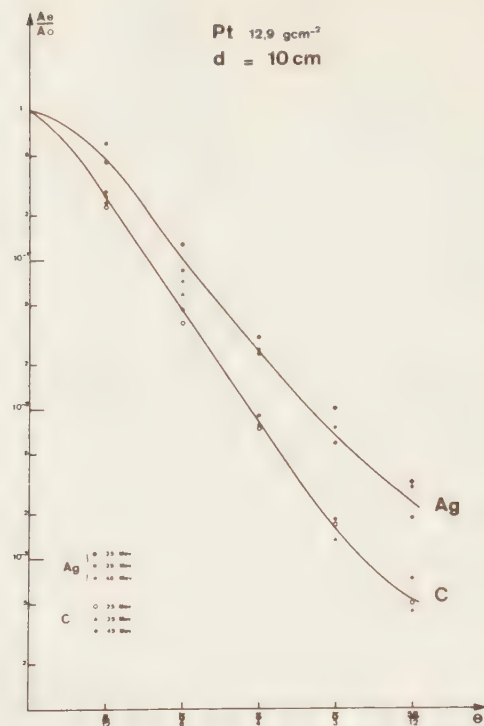


Fig. 27

Gradient transversal pour l'activation du carbone à 20 et 40 cm derrière la cible de platine pour des énergies du faisceau d'électrons de 25, 35 et 45 MeV.

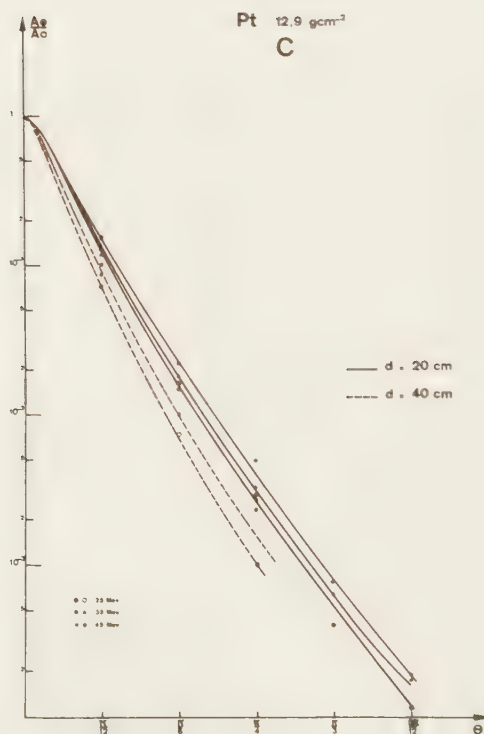


Fig. 28

Gradient transversal pour l'activation de l'argent à 20 et 40 cm derrière la cible de platine pour des énergies du faisceau d'électrons de 25, 35 et 45 MeV.

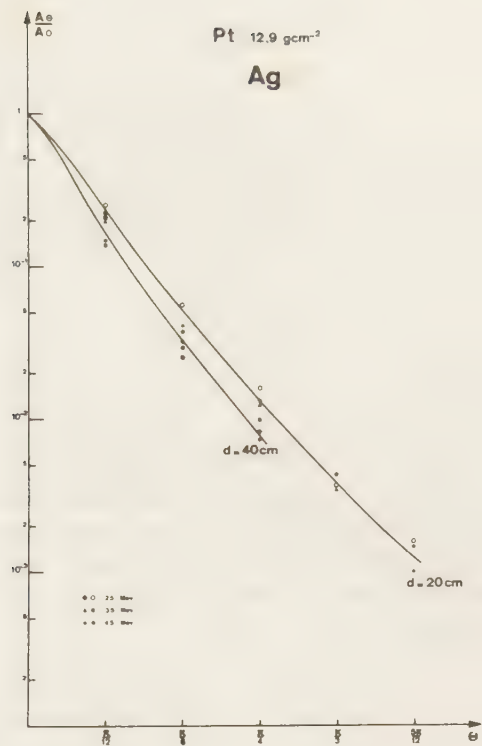


Fig. 29

Gradient transversal pour l'activation du carbone à 10 cm derrière la cible d'aluminium pour des énergies du faisceau d'électrons de 25, 35 et 45 MeV.

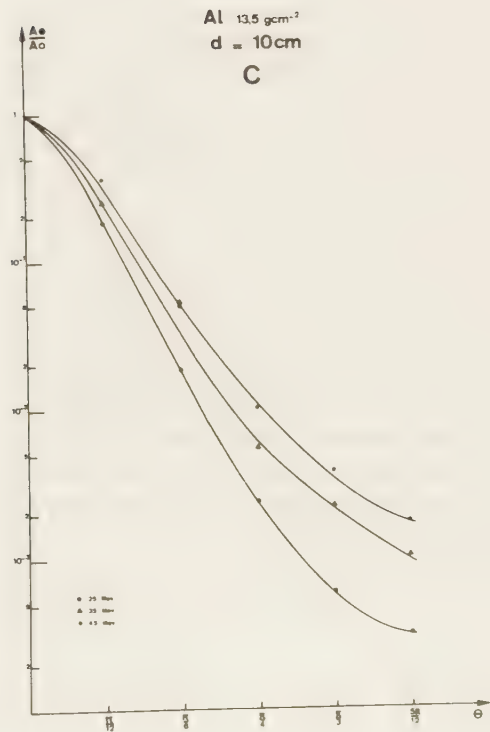


Fig. 30

Gradient transversal pour l'activation du carbone à 20 et 40 cm derrière la cible d'aluminium pour des énergies du faisceau d'électrons de 25, 35 et 45 MeV.

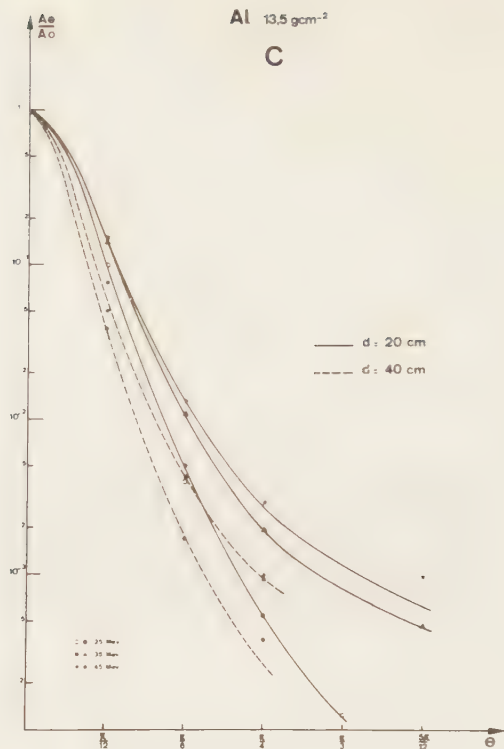
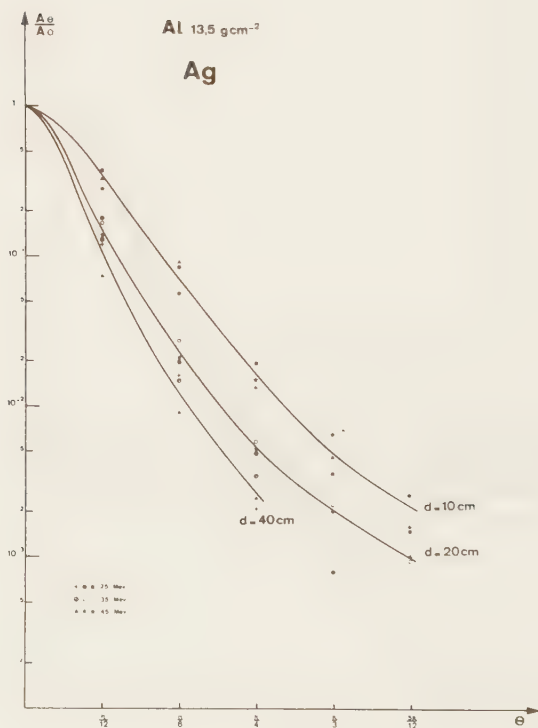


Fig. 31

Gradient transversal pour l'activation de l'argent à 10, 20 et 40 cm derrière la cible d'aluminium pour des énergies du faisceau d'électrons de 25, 35 et 45 MeV.



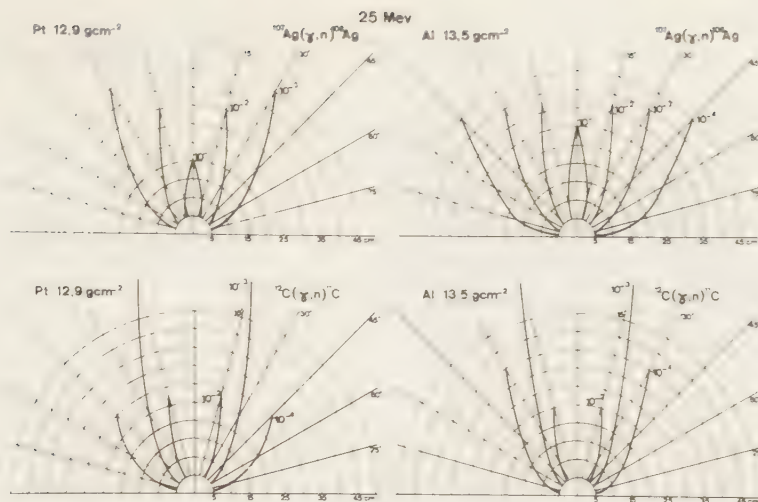


Fig. 32

Repartition spatiale du faisceau de photons γ . Courbes d'égale activation du carbone et de l'argent à 25 MeV avec une cible de platine et d'aluminium

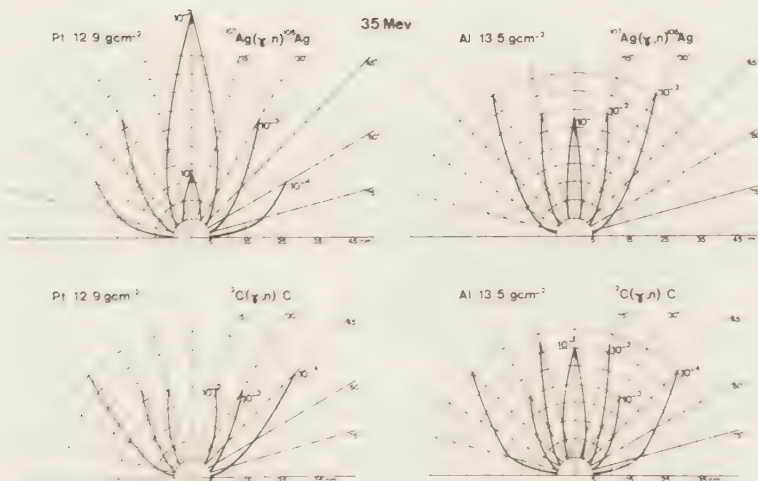


Fig. 33

Répartition spatiale du faisceau de photons γ . Courbes d'égale activation du carbone et de l'argent à 35 MeV avec une cible de platine et d'aluminium.

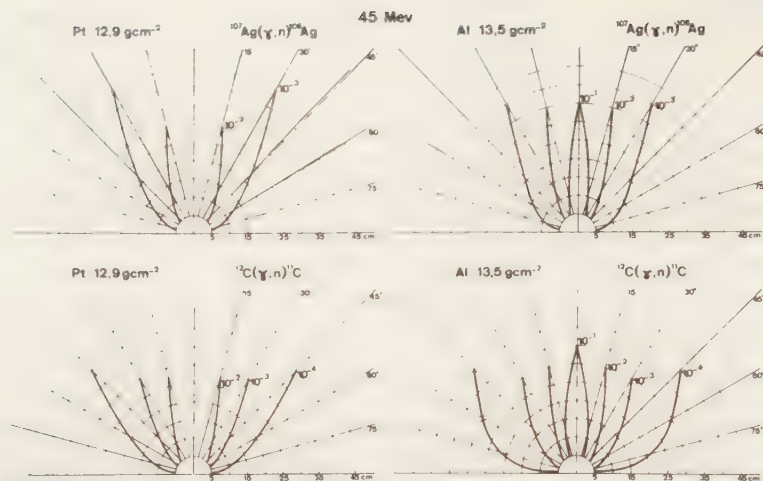


Fig. 34

Répartition spatiale du faisceau de photons γ . Courbes d'égale activation du carbone et de l'argent à 45 MeV avec une cible de platine et d'aluminium

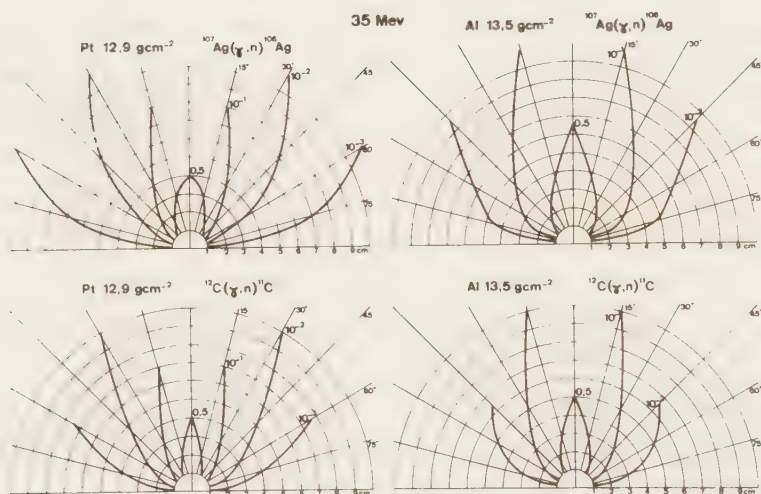


Fig. 35

Répartition spatiale du faisceau de photons γ . Courbes d'égale activation du carbone et de l'argent à 35 MeV dans le voisinage immédiat d'une cible de platine et d'aluminium.

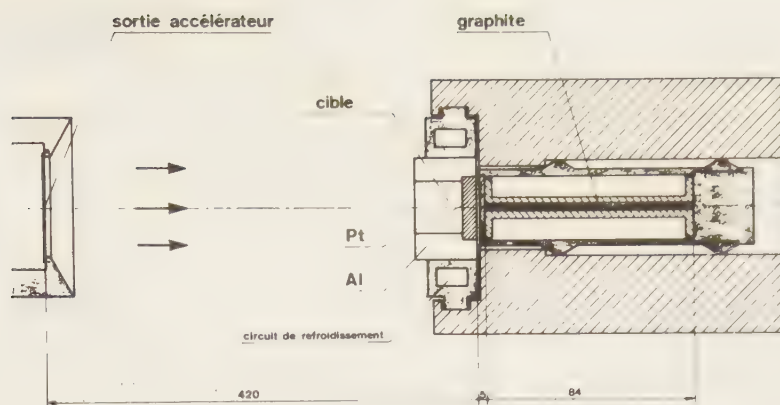


Fig. 36

Représentation schématique de la cartouche contenant l'empilement de cylindres de graphite ou d'argent, utilisée pour la détermination du gradient d'activation longitudinal dans l'axe.

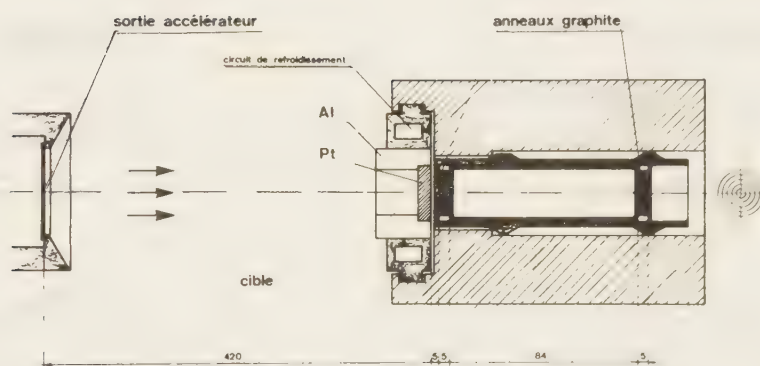


Fig. 37

Représentation schématique de la cartouche contenant les anneaux concentriques de graphite ou d'argent, utilisée pour la détermination du gradient d'activation transversal.

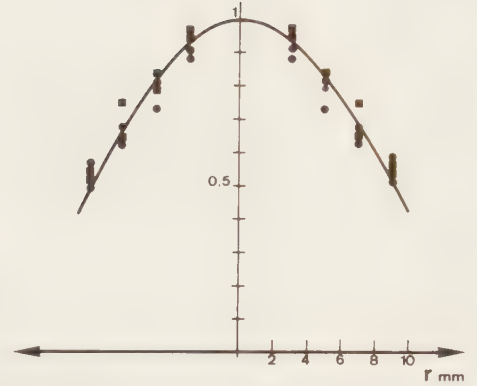
35 Mev

Pt 12,9 gcm⁻²

• $^{107}\text{Ag}(\gamma, n)^{106}\text{Ag}$
 ■ $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$

Fig. 38

Gradient transversal dans la cartouche pour l'activation du carbone et de l'argent à 5 mm derrière la cible de platine irradiée par des électrons de 35 MeV.



35 Mev

Pt 12,9 gcm⁻²

• $^{107}\text{Ag}(\gamma, n)^{106}\text{Ag}$
 ■ $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$

Fig. 39

Gradient transversal dans la cartouche pour l'activation du carbone et de l'argent à 94 mm derrière la cible de platine irradiée par des électrons de 35 MeV.

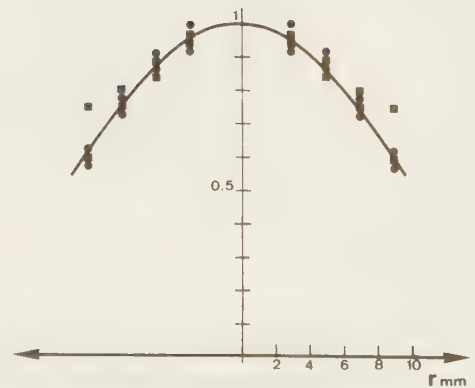


Fig. 40

Gradient transversal dans la cartouche pour l'activation du carbone et de l'argent à 5 mm et 94 mm derrière la cible de platine irradiée par des électrons de 25 MeV.

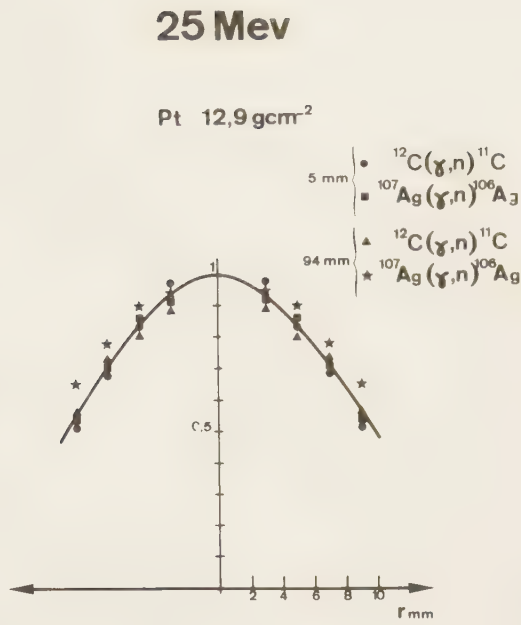
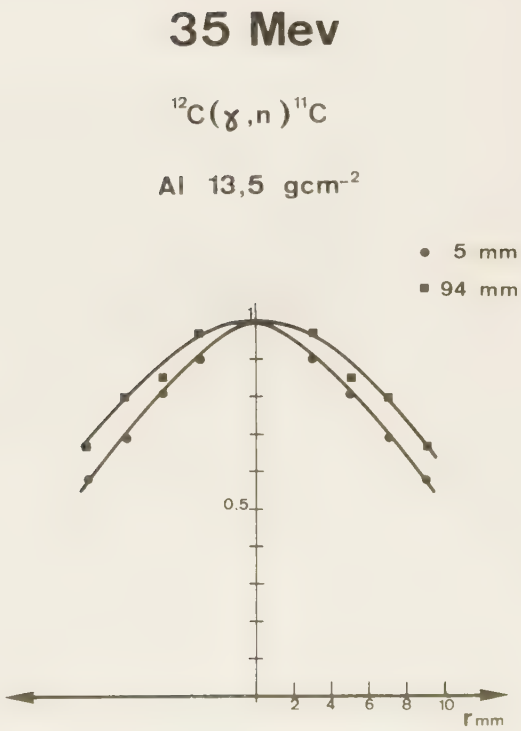


Fig. 41

Gradient transversal dans la cartouche pour l'activation du carbone à 5 mm et 94 mm derrière la cible en aluminium irradiée par des électrons de 35 MeV.



35 Mev

$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$

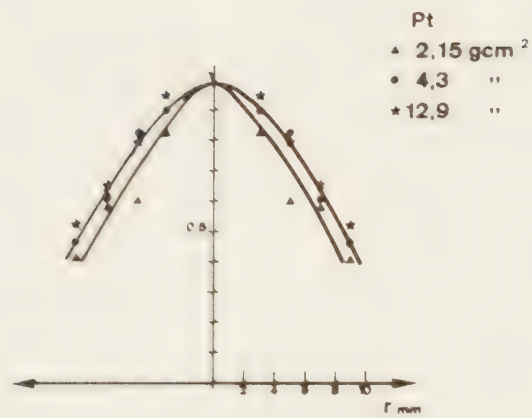


Fig. 42

Gradient transversal dans la cartouche pour l'activation du carbone à 5 mm derrière des cibles de platine de diverses épaisseurs, irradiées par des électrons de 35 MeV.

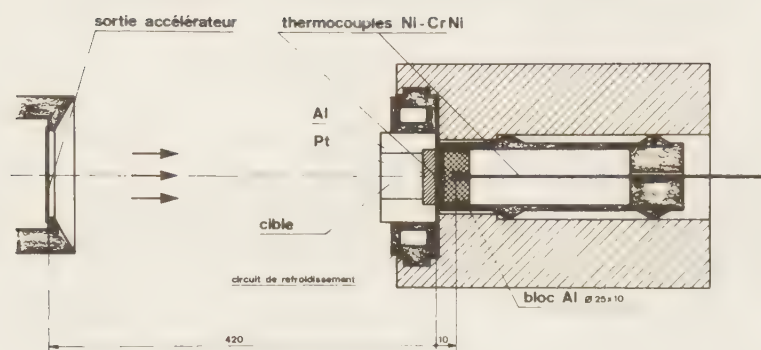


Fig. 43

Position des thermocouples lors des mesures de températures dans un bloc d'aluminium placé dans une cartouche et sur la face arrière des cibles.

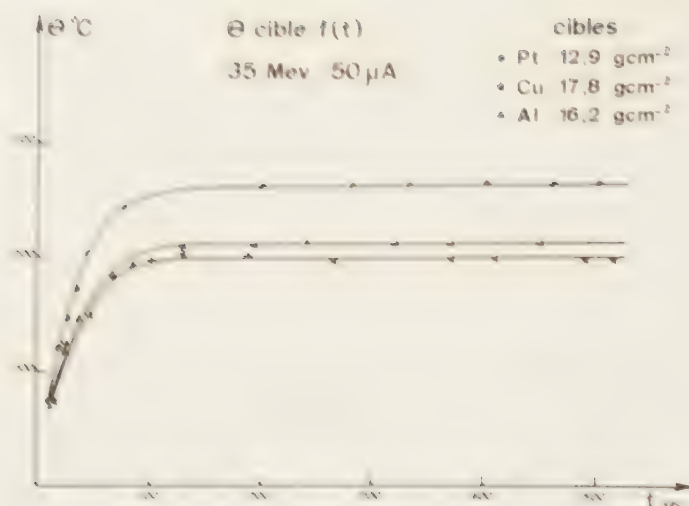


Fig. 44

Variation en fonction du temps de la température de la face arrière des cibles en Al, Cu et Pt irradiées par un faisceau d'électrons de 35 MeV d'intensité moyenne 50 μ A.

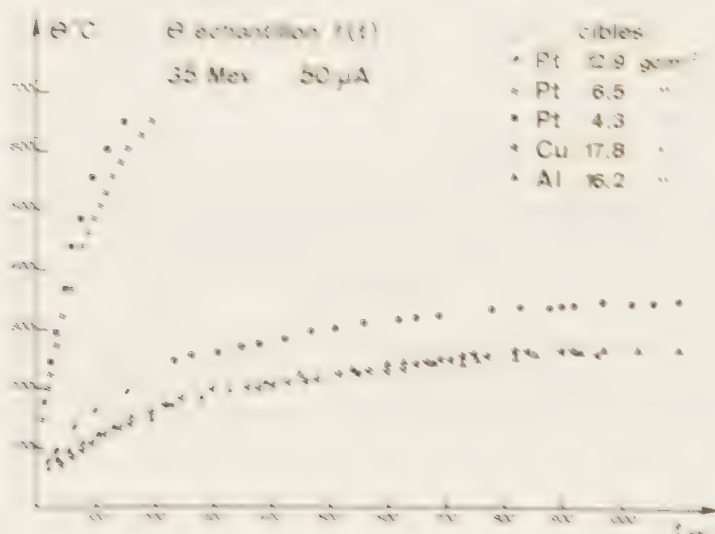


Fig. 45

Variation en fonction du temps de la température existant à l'intérieur d'un bloc d'aluminium de $\varnothing$ 25 mm $\times$ 10 mm placé derrière des cibles en Al, Cu et Pt irradiées par un faisceau d'électrons de 35 MeV d'intensité moyenne 50 μ A.

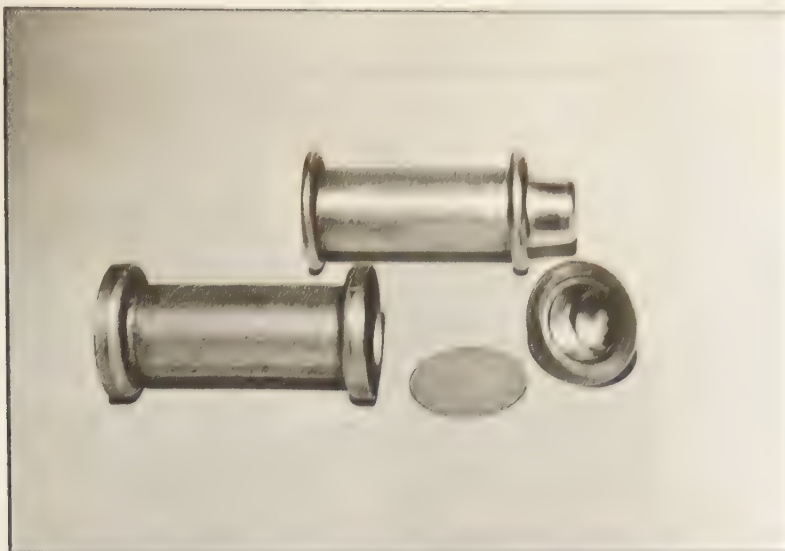


Fig. 46

Cartouche pour l'irradiation d'échantillons par les photons.

Partie inférieure de la photographie :

- les trois parties principales, le corps, le chapeau dans lequel on place les petits échantillons, le disque qui permet de les retenir.

Partie supérieure de la photographie :

- une cartouche sertie aux deux extrémités prête à être expédiée dans le montage d'irradiation.

Des échantillons de grandes dimensions peuvent éventuellement être introduits dans le corps creux de la cartouche.

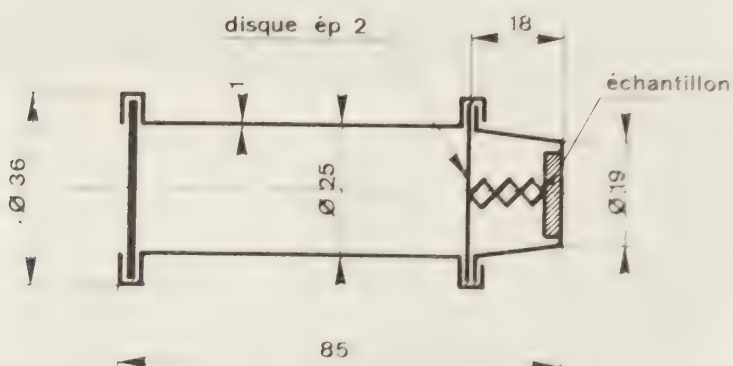


Fig. 47

Principales dimensions de la cartouche

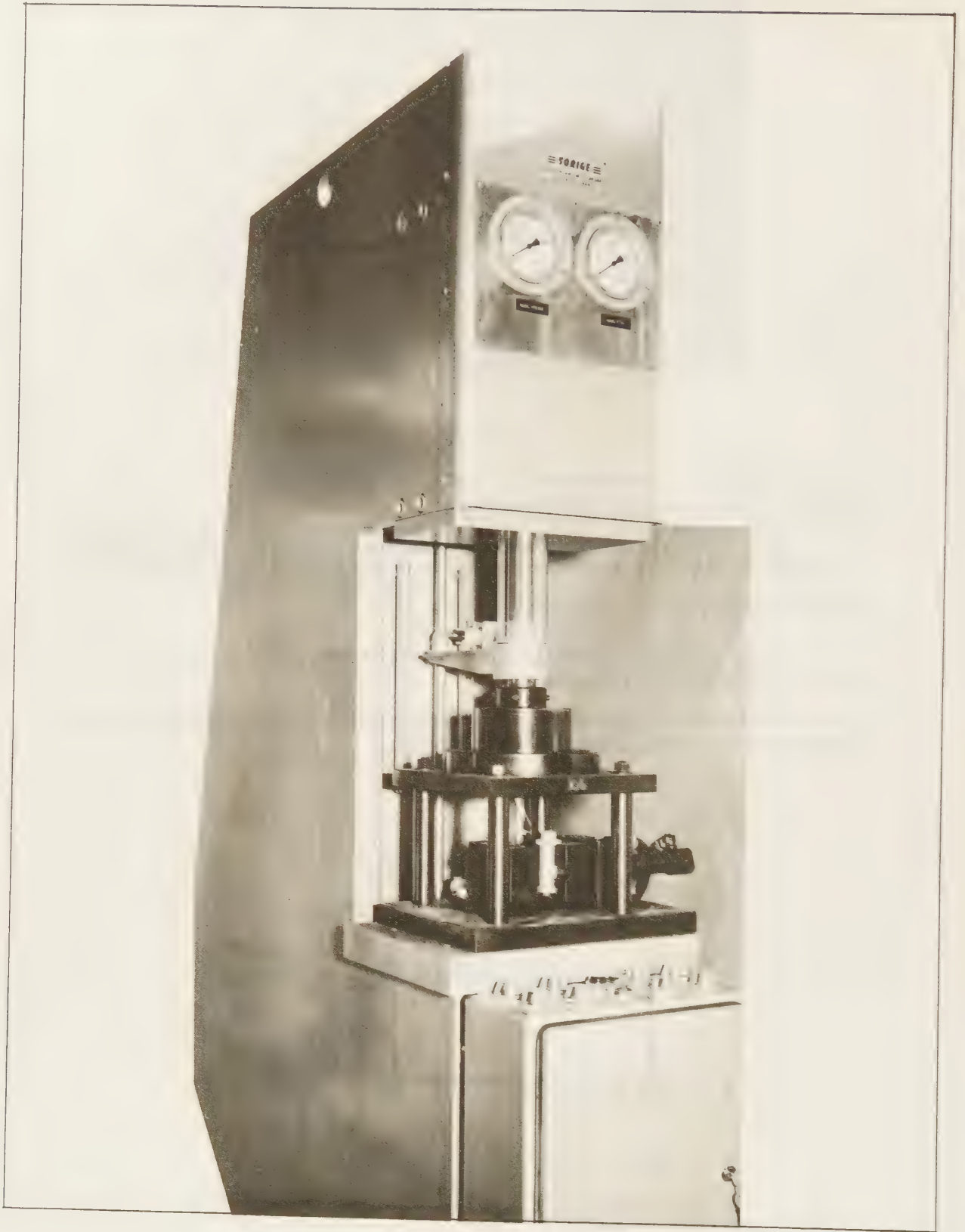


Fig. 48

Presse de 8 tonnes utilisée pour le sertissage des cartouches.

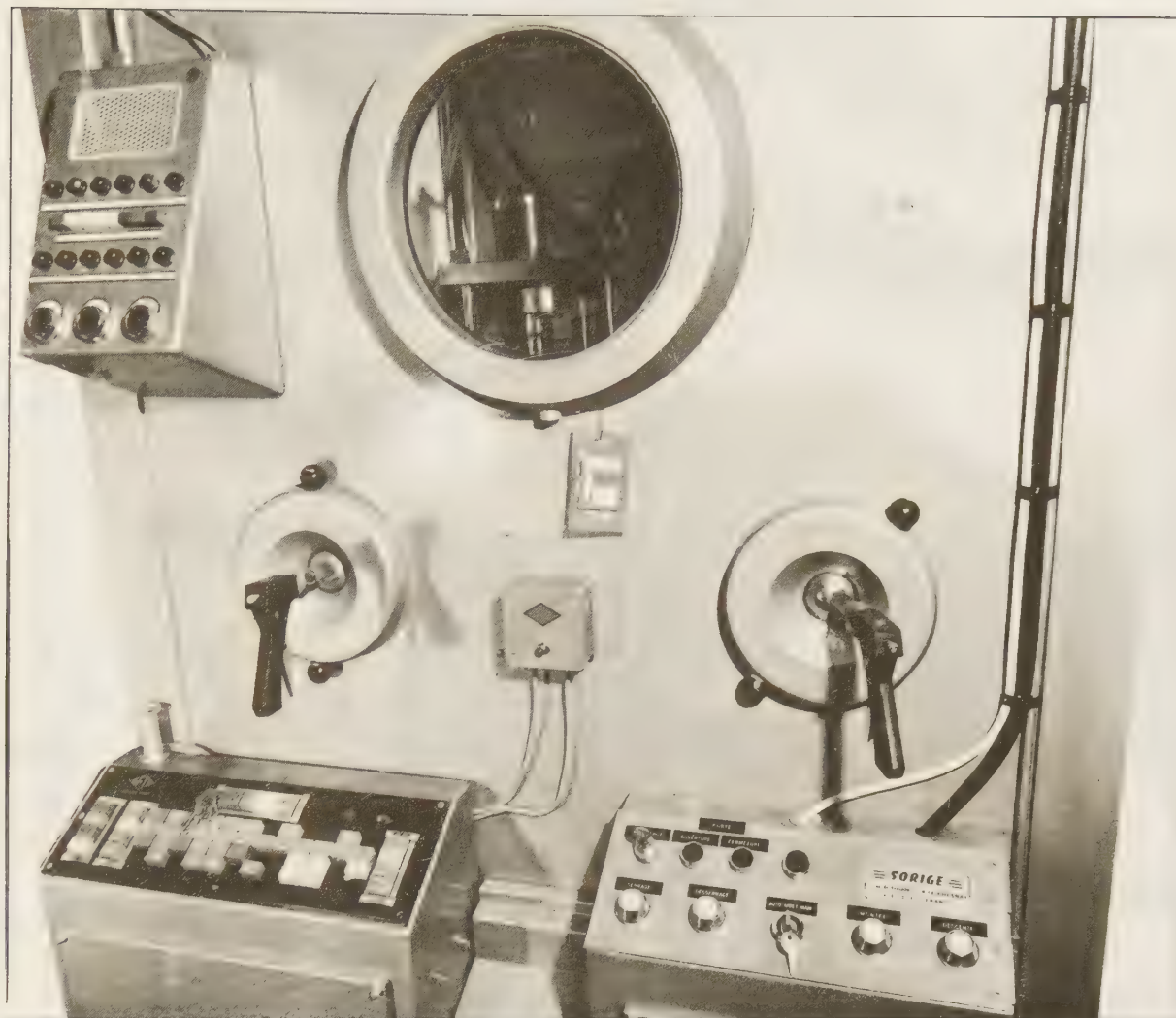


Fig. 49

Cellule blindée dans laquelle sont expédiées les cartouches après activation.

En bas à droite se trouve le pupitre de commande de la presse de dessertissage des cartouches placées à l'intérieur de la cellule.

En bas à gauche se trouve le pupitre de commande des circuits pneumatiques reliant le poste d'expédition et la cellule avec les dispositifs d'irradiation implantés près de deux cyclotrons et dans la chambre des cibles de l'accélérateur linéaire.

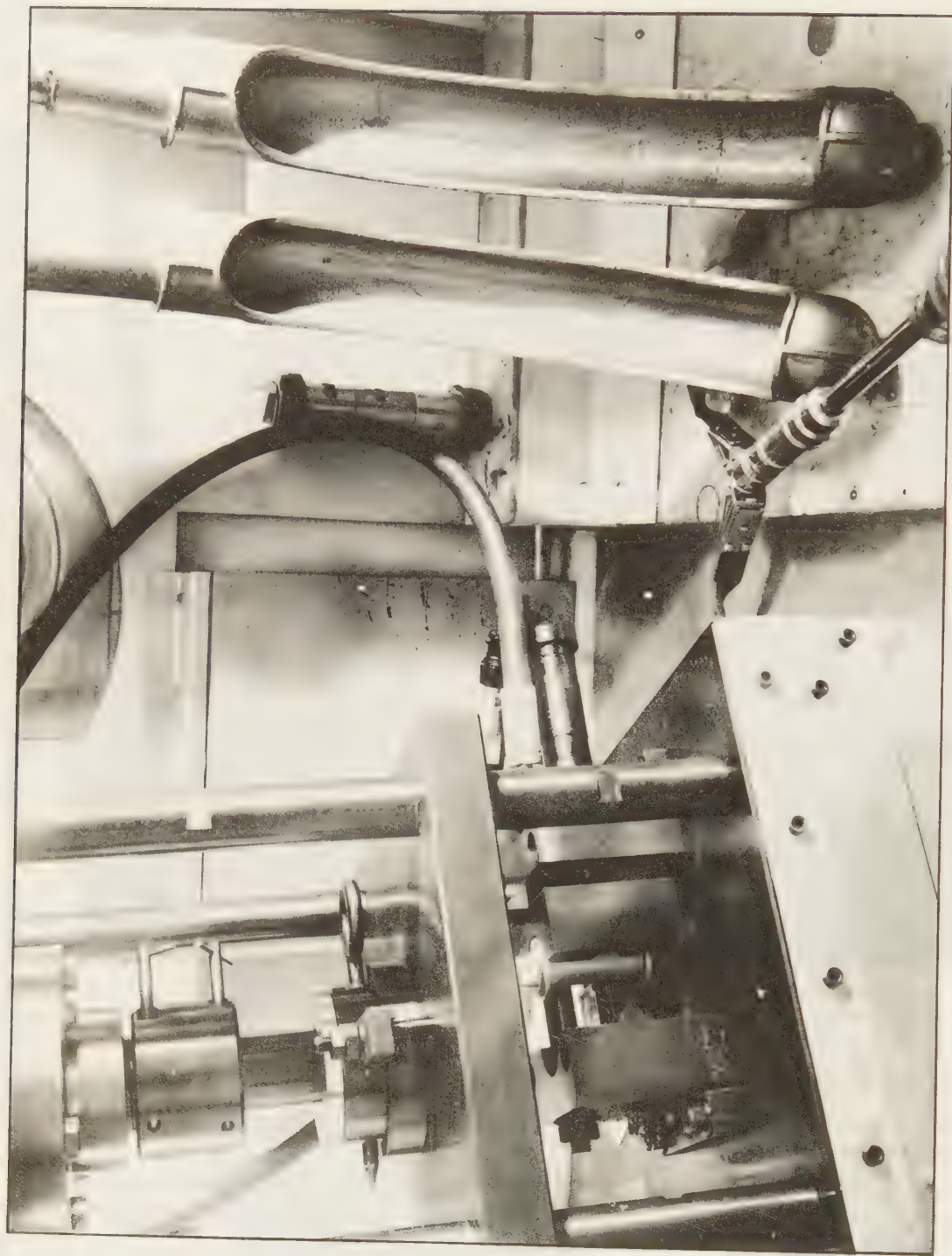


Fig. 50

Presse de 10 tonnes dans la cellule blindée pour le dessertissage des cartouches au retour de l'irradiation.

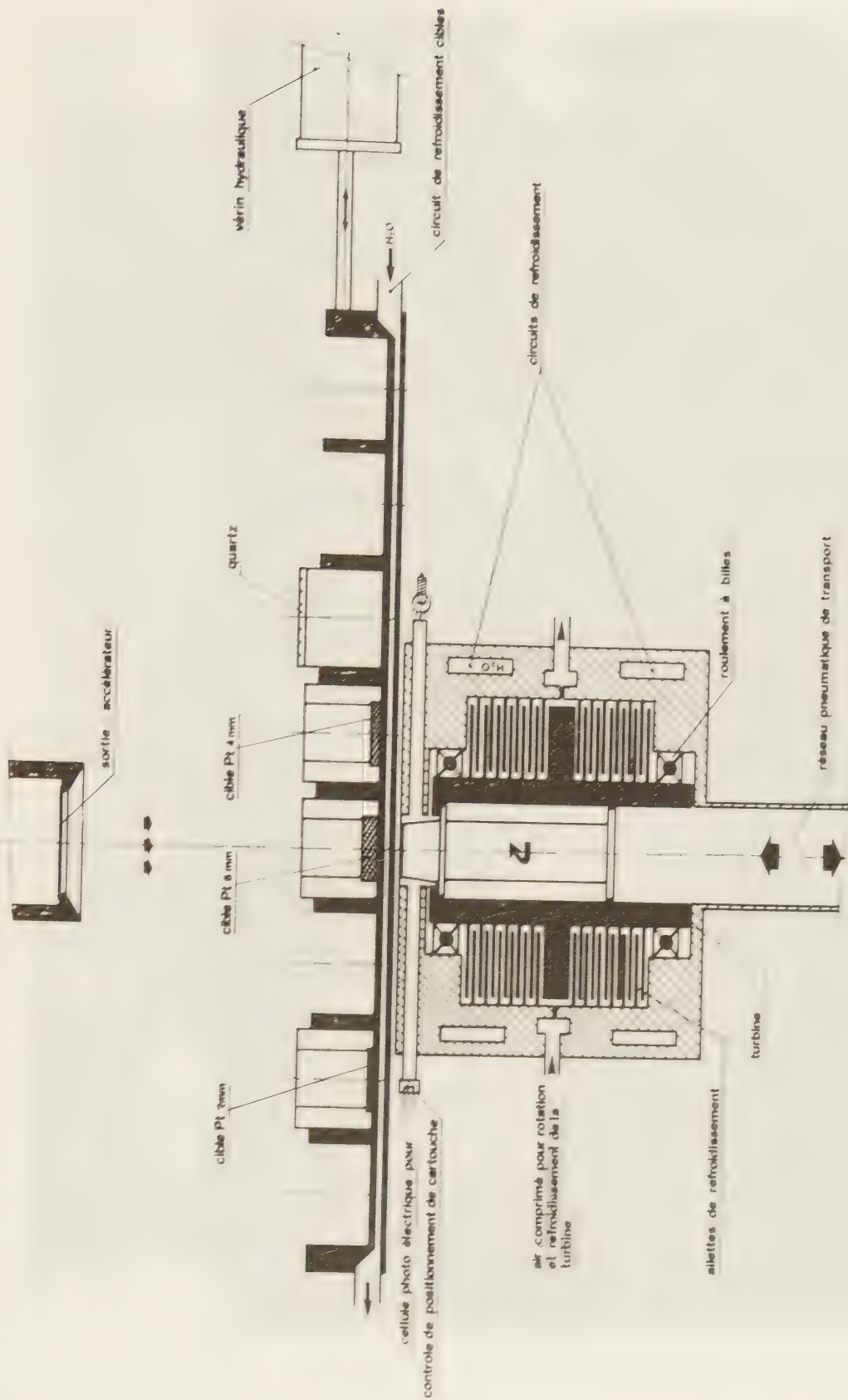


Fig. 51

Schéma de principe du dispositif d'irradiation par les photons }



Fig. 52

Dispositif d'irradiation par les positons / installé dans la chambre des tubes de l'accélérateur linéaire
 A droite on peut apercevoir la sortie de l'accélérateur. C'est le quartz qui est en position d'irradiation
 dans l'axe du faisceau d'électrons.

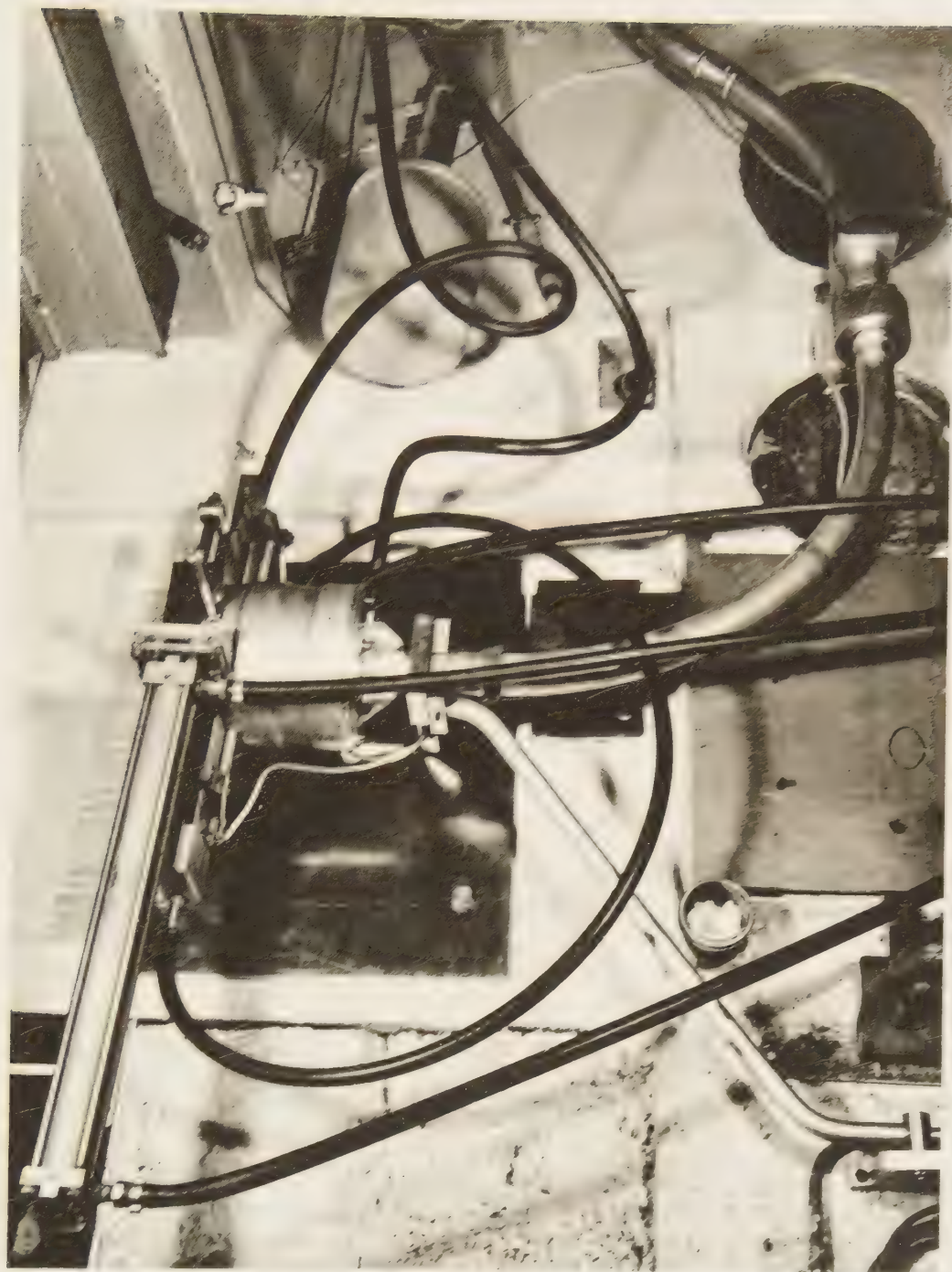
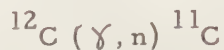


Fig. 53

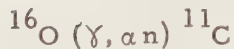
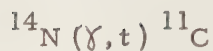
Position du dispositif d'irradiation contre le mur de la chambre des cibles quand l'accélérateur est exploité par d'autres utilisateurs ne faisant pas des expériences d'activation par les photons γ de freinage.

Fig. 54

Activation du carbone, de l'azote et de l'oxygène en fonction de l'énergie au moyen des réactions



- Graphite
- C_2F_4
- * $\text{C}_2\text{H}_3\text{Cl}$



- BeO
- ▲ SO_4Na_2

Activités obtenues à la fin d'une irradiation de 1 minute dans un faisceau d'intensité moyenne $100\mu\text{A}$, par μg d'élément.

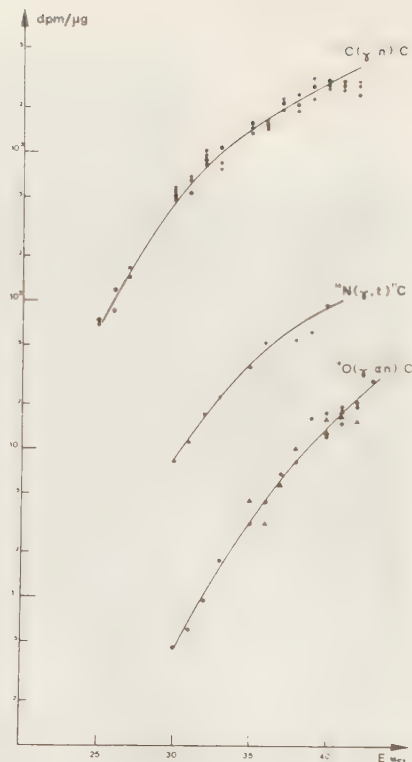
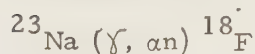
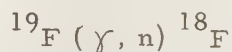


Fig. 55

Activation de l'oxygène, du fluor et du sodium en fonction de l'énergie, au moyen des réactions



Activités obtenues à la fin d'une irradiation de 1 minute dans un faisceau d'intensité moyenne $100\mu\text{A}$, par μg d'élément.

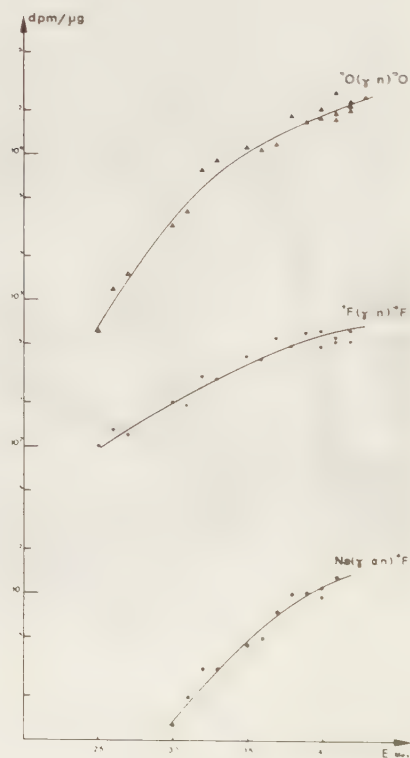
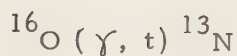
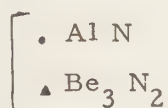
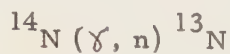


Fig. 56

Activation de l'azote et de l'oxygène en fonction de l'énergie au moyen des réactions



Activités obtenues à la fin d'une irradiation de 1 minute dans un faisceau d'intensité moyenne $100\mu\text{A}$, par μg d'élément.

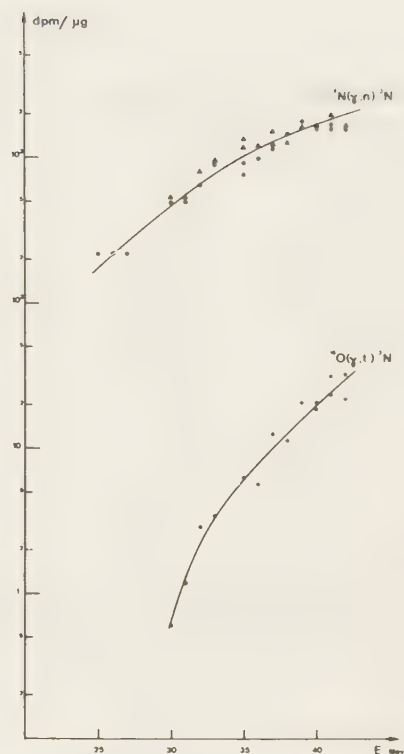
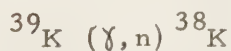
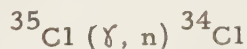


Fig. 57

Activation du chlore, du potassium et du titane en fonction de l'énergie, au moyen des réactions



Activités obtenues à la fin d'une irradiation de 1 minute dans un faisceau d'intensité moyenne $100\mu\text{A}$, par μg d'élément.

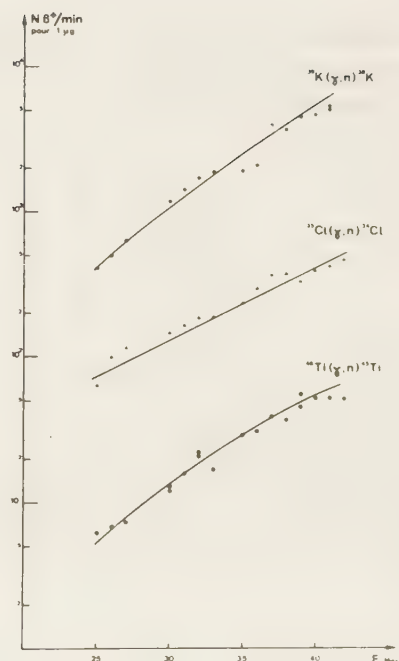
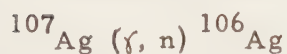
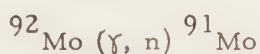
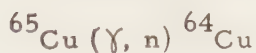
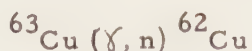
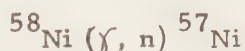


Fig. 58

Activation du nickel, du cuivre, du molybdène et de l'argent en fonction de l'énergie au moyen des réactions



Activités obtenues à la fin d'une irradiation de 1 minute dans un faisceau d'intensité moyenne $100 \mu\text{A}$, par μg d'élément.

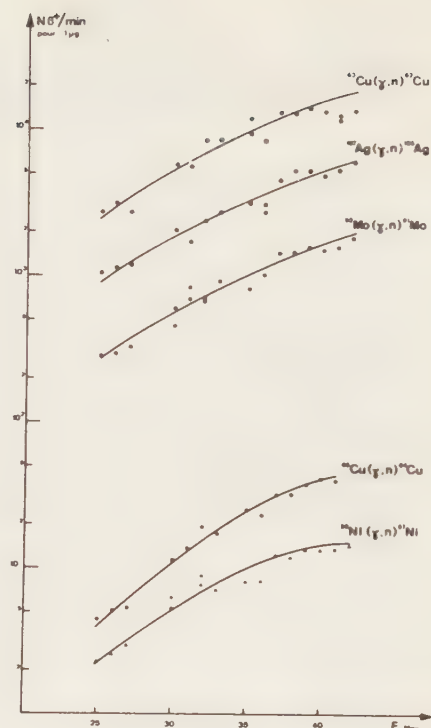
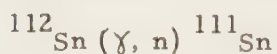
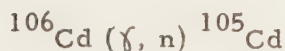
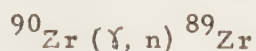


Fig. 59

Activation du sodium, du zirconium, du cadmium et de l'étain en fonction de l'énergie au moyen des réactions



Activités obtenues à la fin d'une irradiation de 1 minute dans un faisceau d'intensité moyenne $100 \mu\text{A}$, par μg d'élément. Les valeurs relatives à l'activation du sodium sont à diviser par 10.

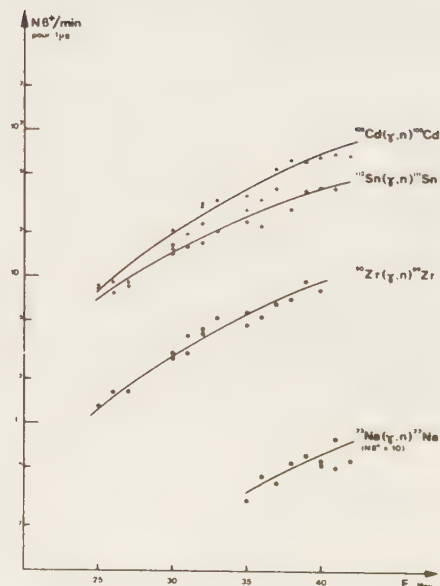
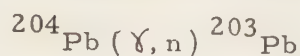


Fig. 60

Activation de l'or et du plomb en fonction de l'énergie, au moyen des réactions



Activités obtenues à la fin d'une irradiation de 1 minute dans un faisceau d'intensité moyenne $100 \mu\text{A}$, par μg d'élément.

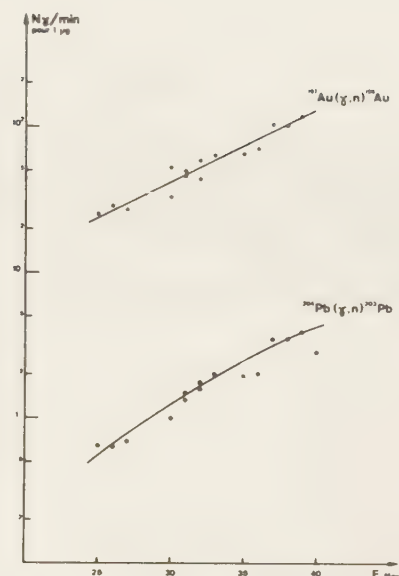


Fig. 61

Variation en fonction de l'énergie, de l'importance relative des interférences :

- d'azote et d'oxygène dans les dosages de carbone $\left[^{11}\text{C}_\text{C} / ^{11}\text{C}_\text{O} \text{ et } ^{11}\text{C}_\text{C} / ^{11}\text{C}_\text{N} \right]$

- d'oxygène dans les dosages d'azote $\left[^{13}\text{N}_\text{N} / ^{13}\text{N}_\text{O} \right]$

- de sodium dans les dosages de fluor

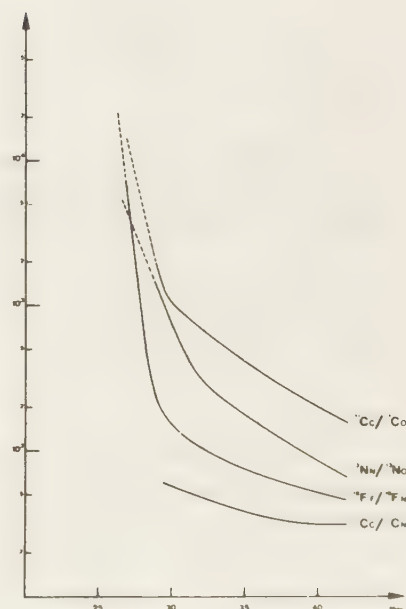
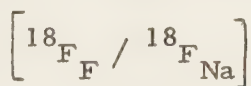


Fig. 62

Hauteur de la barrière coulombienne pour les protons et les particules α en fonction du numéro atomique Z du noyau de la cible, pour r_0 égal respectivement à $1,2 \cdot 10^{-13}$ et $1,4 \cdot 10^{-13}$, d'après [34].

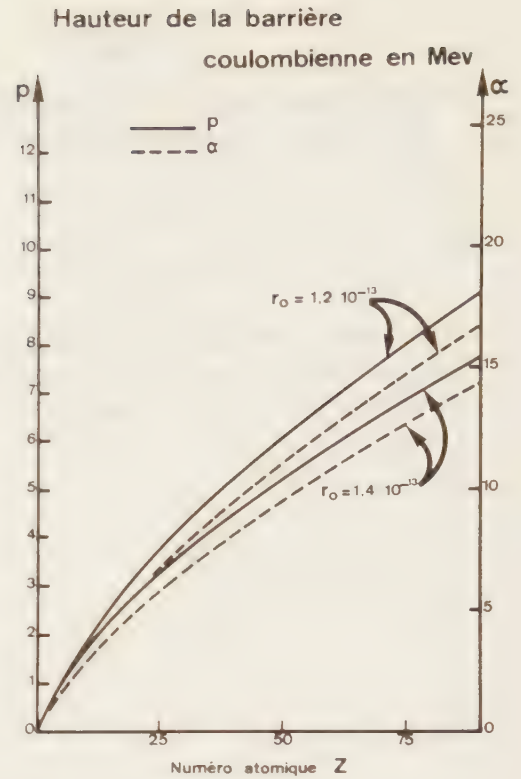


Fig. 63

Principe de la méthode de l'épaisseur équivalente.

En haut :

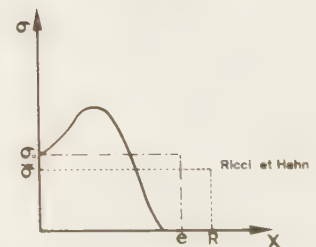
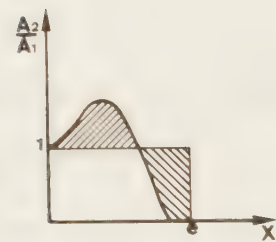
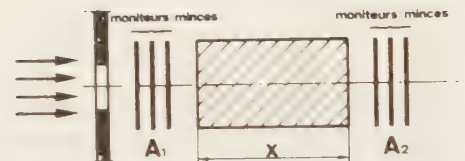
Disposition des moniteurs et du matériau pour lequel on veut déterminer l'épaisseur équivalente.

Au milieu :

Courbe d'activation et définition de l'épaisseur équivalente.

En bas :

Représentation schématique de la fonction d'excitation de la réaction nucléaire utilisée pour le dosage ainsi que de l'épaisseur équivalente et de la section efficace moyenne correspondantes.



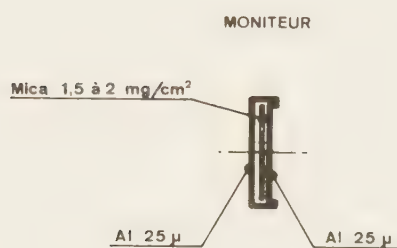
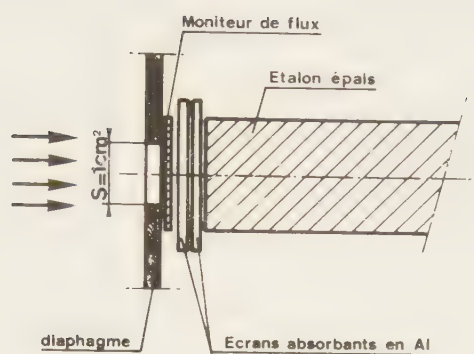


Fig. 64

Disposition relative des moniteurs de flux, écrans absorbants en aluminium et étalons épais, pour déterminer les courbes d'activation intégrée.

Fig. 65

Activation du bore et de l'azote dans un échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction de l'énergie des protons

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$

$I \approx 1 \mu\text{A}$

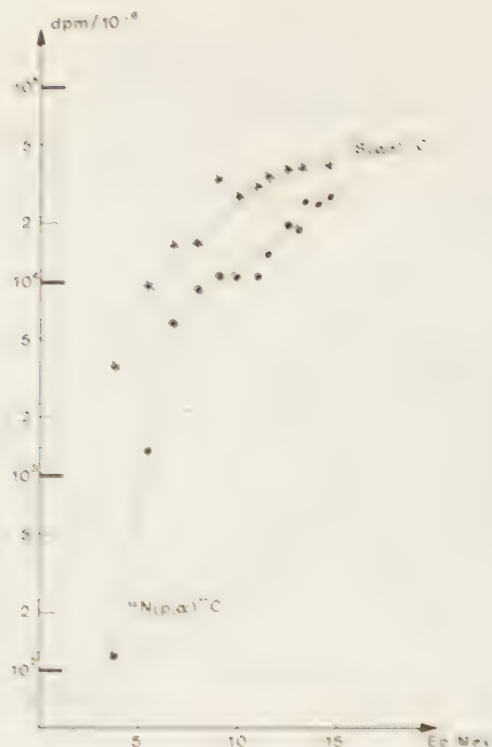


Fig. 66

Activation du carbone et de l'oxygène dans un échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction de l'énergie des protons

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$

$I \approx 1 \mu\text{A}$

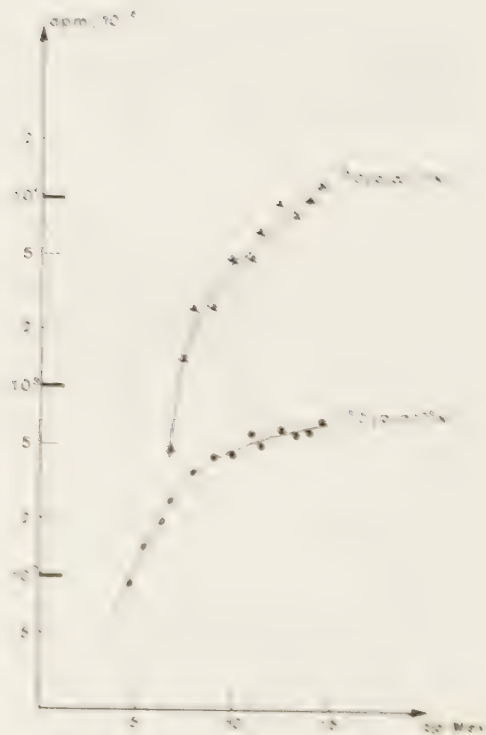


Fig. 67

Activation de l'oxygène dans un échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction de l'énergie des protons

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 1 \mu\text{A}$

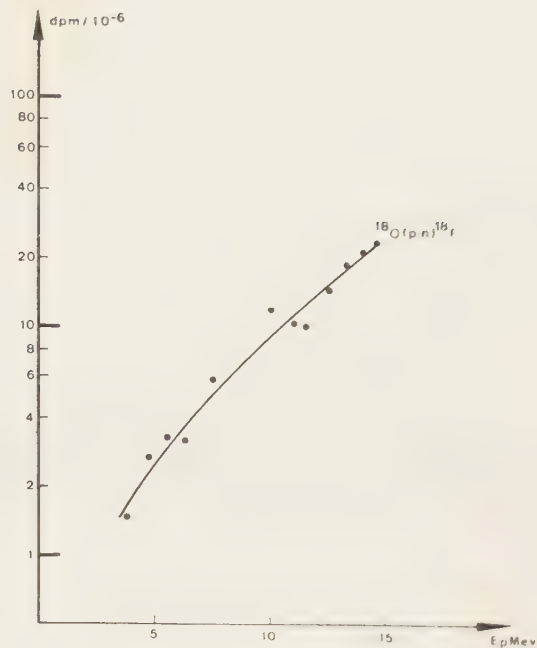


Fig. 68

Activation du fluor dans un échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction de l'énergie des protons

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 1 \mu\text{A}$



Fig. 69

Répartition des activités en ^{24}Na en fonction de la position du moniteur d'aluminium d'épaisseur 100μ dans le feuilleté.

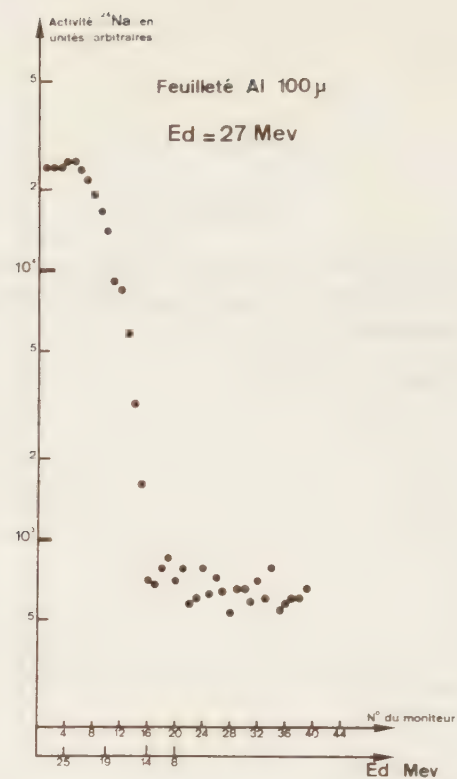


Fig. 70

Activation du bore et de l'azote dans un échantillon épais ($R \neq R_{al}$) en fonction de l'énergie des deutons

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 1 \mu\text{A}$

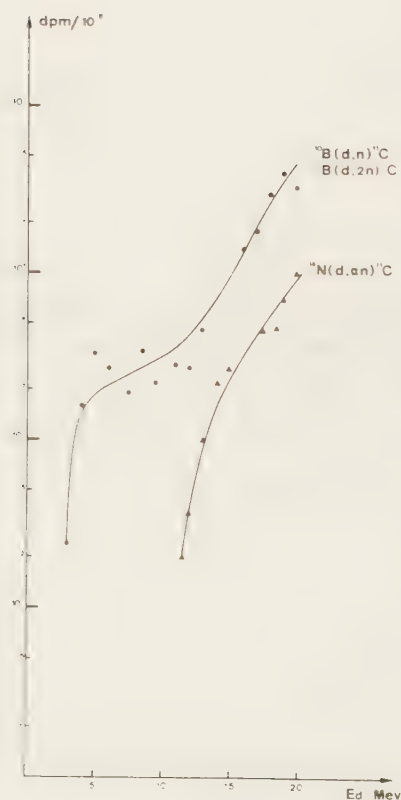


Fig. 71

Activation du carbone et de l'oxygène dans
un échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction
de l'énergie des deutons

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$

$I \approx 1 \mu\text{A}$

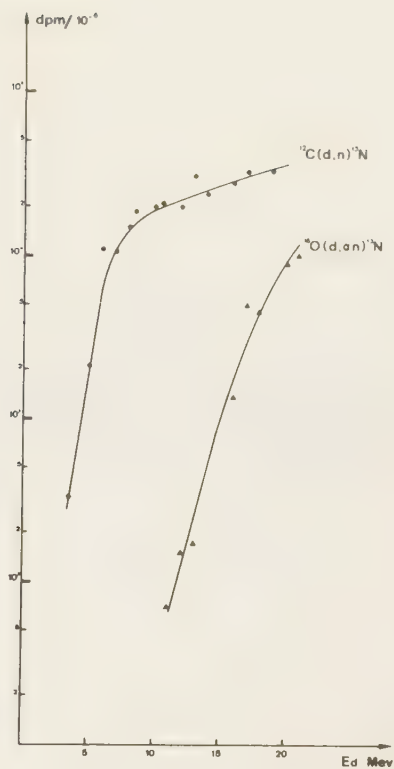


Fig. 72

Activation de l'azote et de l'oxygène dans
un échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction
de l'énergie des deutons

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$

$I \approx 1 \mu\text{A}$

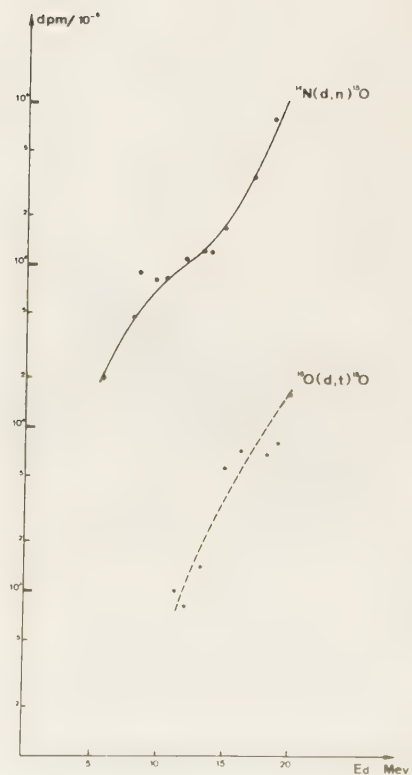


Fig. 73

Activation du béryllium, du bore et du carbone dans un échantillon épais
($R \neq R_{al}$) en fonction de l'énergie des ${}^3\text{He}$

$t \text{ irradi.} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 1 \mu\text{A}$

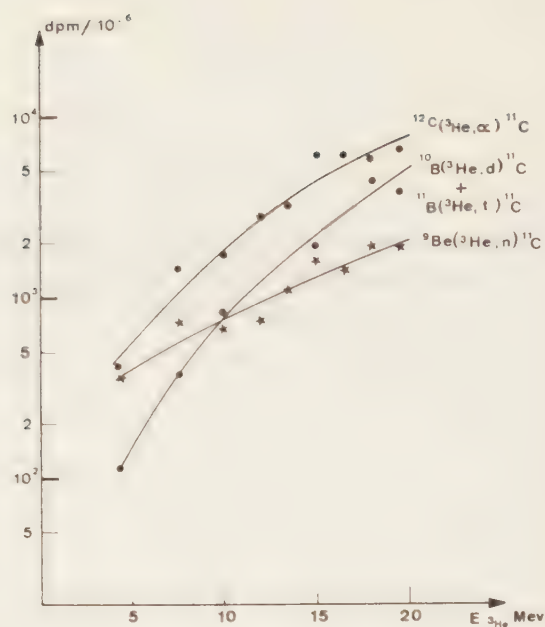
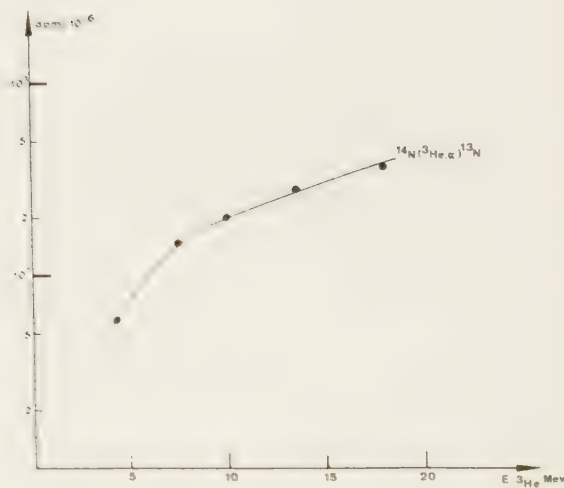


Fig. 74

Activation de l'azote dans un échantillon épais ($R \neq R_{al}$) en fonction de l'énergie des ${}^3\text{He}$

$t \text{ irradi.} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 1 \mu\text{A}$



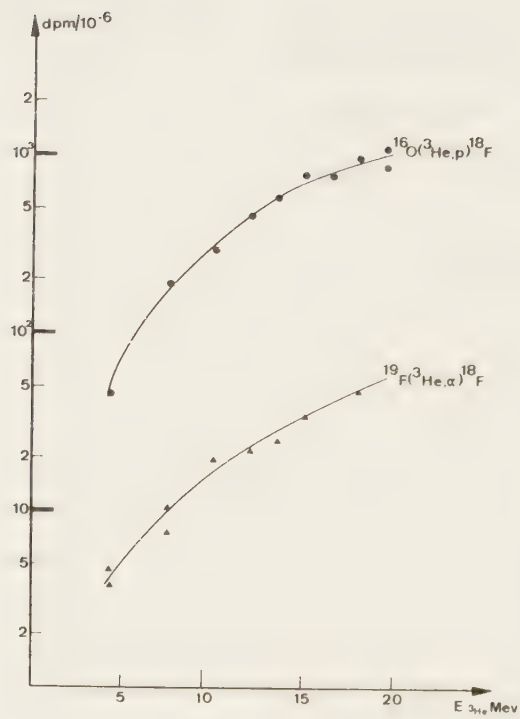


Fig. 75

Activation de l'oxygène et du fluor dans un
échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction de
l'énergie des ^3He
 $t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 1 \mu\text{A}$

Fig. 76

Activation du béryllium et du carbone dans un échantillon épais ($R \neq R_{al}$) en fonction de l'énergie des particules α

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 0,25 \mu\text{A}$

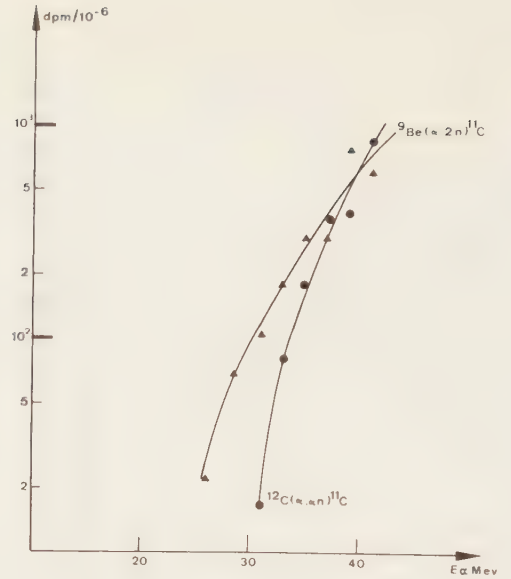


Fig. 77

Activation du bore et de l'azote dans un échantillon épais ($R \neq R_{al}$) en fonction de l'énergie des particules α

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 0,25 \mu\text{A}$

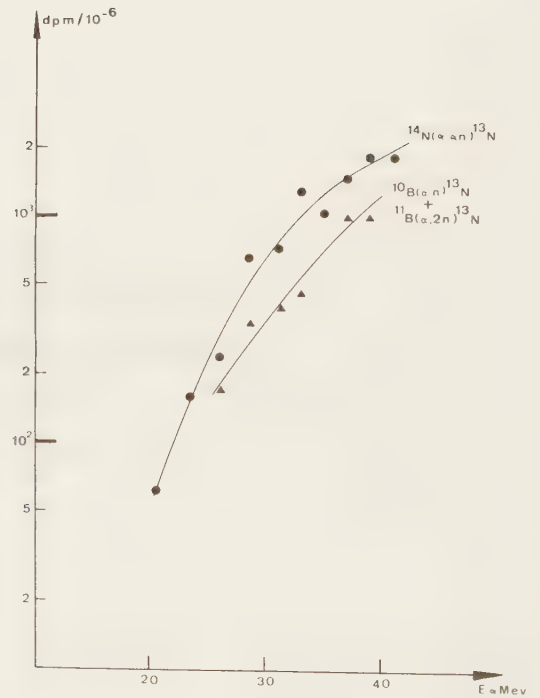


Fig. 78

Activation du carbone dans un échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction de l'énergie des particules α .

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 0,25 \mu\text{A}$

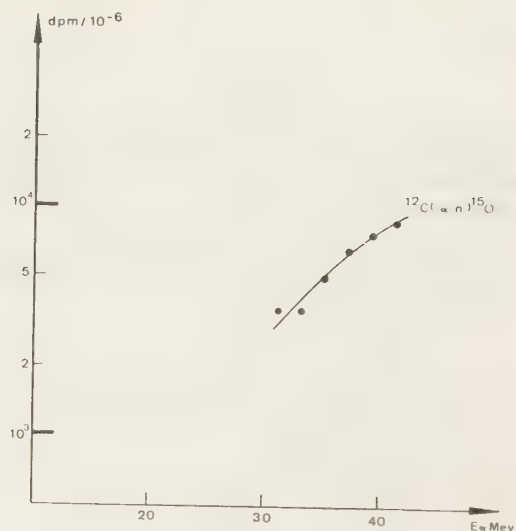


Fig. 79

Activation de l'oxygène et du fluor dans un échantillon épais ($R \neq R_{a1}$) en fonction de l'énergie des particules α .

$t_{\text{irrad.}} = 1 \text{ min.}$ $I \approx 0,25 \mu\text{A}$

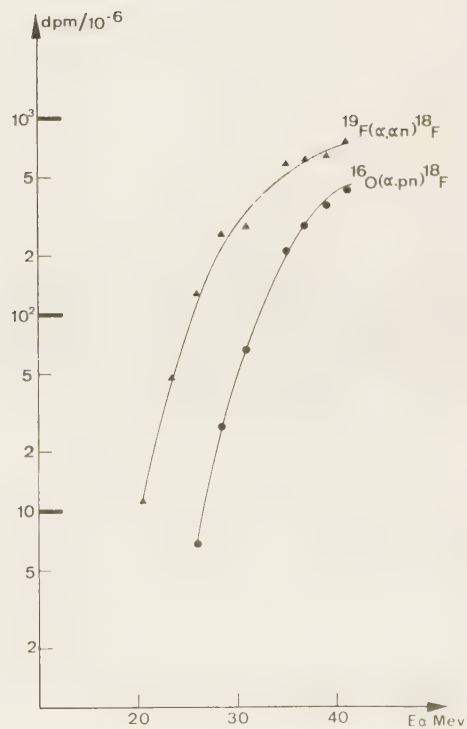


Fig. 80

Variation en fonction de l'énergie des protons, de l'importance relative des interférences

- de carbone dans les dosages d'oxygène et réciproquement

$$\left[{}^{13}\text{NO} / {}^{13}\text{NC} \right]$$

- d'azote dans les dosages de bore et réciproquement

$$\left[{}^{11}\text{CB} / {}^{11}\text{CN} \right]$$

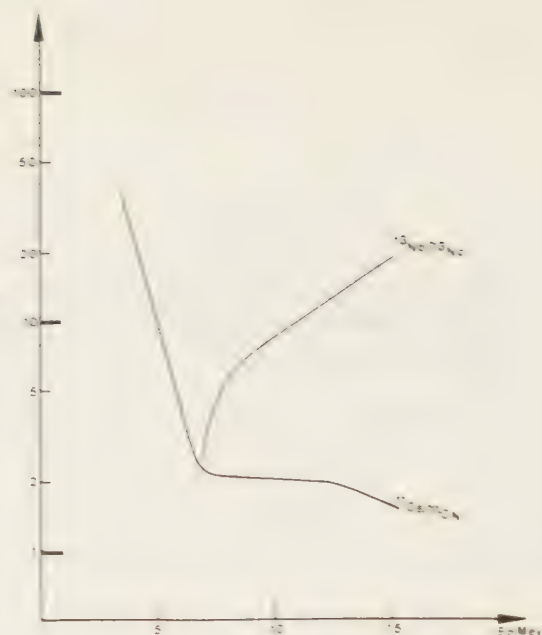


Fig. 81

Variation en fonction de l'énergie des protons, de l'importance relative de l'interférence du fluor dans les dosages d'oxygène et réciproquement,

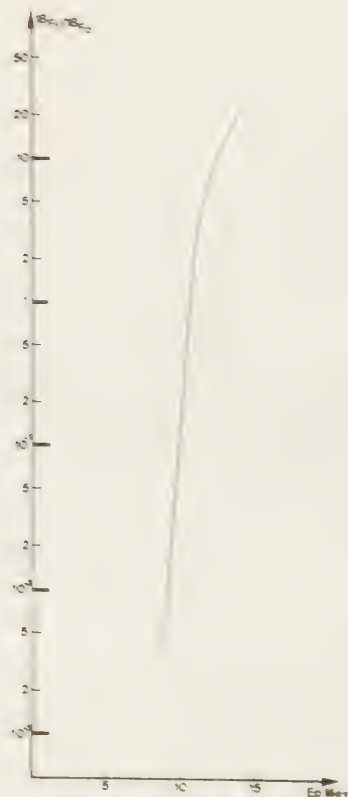


Fig. 82

Variation en fonction de l'énergie des deutons, de l'importance relative des interférences

- d'azote dans les dosages de bore et réciproquement

$$\left[{}^{11}\text{C}_\text{B} / {}^{11}\text{C}_\text{N} \right]$$

- de l'oxygène dans les dosages de carbone et réciproquement

$$\left[{}^{13}\text{N}_\text{C} / {}^{13}\text{N}_\text{O} \right]$$

- de l'oxygène dans les dosages d'azote

$$\left[{}^{15}\text{O}_\text{N} / {}^{15}\text{O}_\text{O} \right]$$

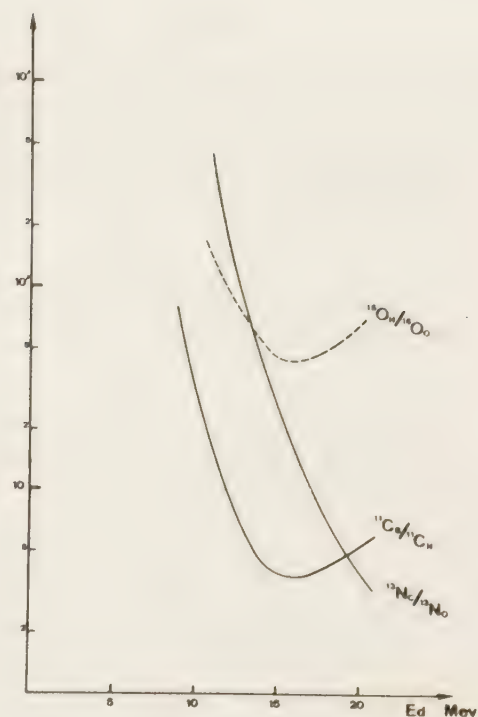


Fig. 83

Variation en fonction de l'énergie des deutons, de l'importance relative des interférences

- de carbone dans les dosages de bore

$$\left[{}^{11}\text{C}_\text{B} / {}^{11}\text{C}_\text{C} \right]$$

- d'azote dans les dosages de carbone

$$\left[{}^{13}\text{N}_\text{C} / {}^{13}\text{N}_\text{N} \right]$$

d'après les courbes de rendement publiées par N. N. KRASNOV et al. [61] .

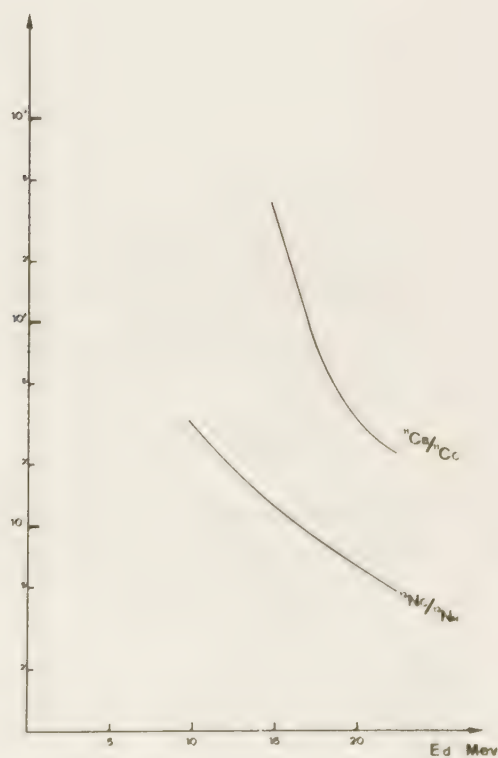


Fig. 84

Variation en fonction de l'énergie des ^3He , de l'importance relative des interférences

- du béryllium dans les dosages de bore et réciproquement

$$\left[{}^{11}\text{C}_\text{B} / {}^{11}\text{C}_\text{Be} \right]$$

- du béryllium dans les dosages de carbone et réciproquement

$$\left[{}^{11}\text{C}_\text{C} / {}^{11}\text{C}_\text{Be} \right]$$

- du bore dans les dosages de carbone et réciproquement

$$\left[{}^{11}\text{C}_\text{C} / {}^{11}\text{C}_\text{B} \right]$$

- du fluor dans les dosages de l'oxygène et réciproquement

$$\left[{}^{18}\text{F}_\text{O} / {}^{18}\text{F}_\text{F} \right]$$

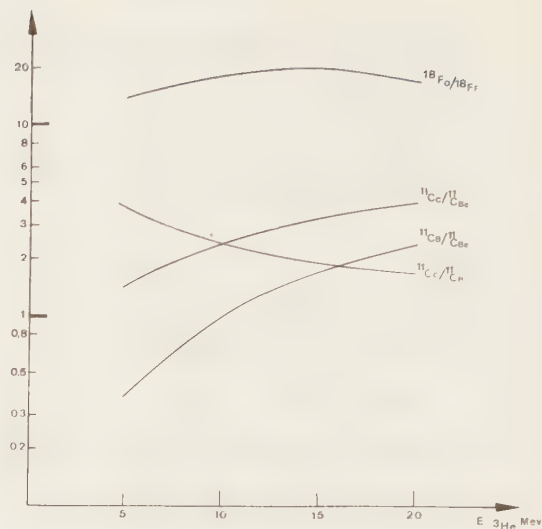


Fig. 85

Variation en fonction de l'énergie des ^3He , de l'importance relative des interférences

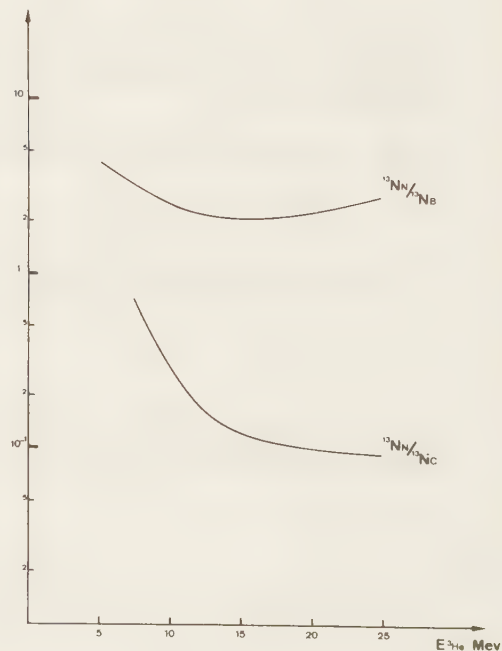
- du bore dans les dosages d'azote et réciproquement

$$\left[{}^{13}\text{N}_\text{N} / {}^{13}\text{N}_\text{B} \right]$$

- du carbone dans les dosages d'azote et réciproquement

$$\left[{}^{13}\text{N}_\text{N} / {}^{13}\text{N}_\text{C} \right]$$

d'après les courbes de rendement publiées par N. N. KRASNOV et al. [61]



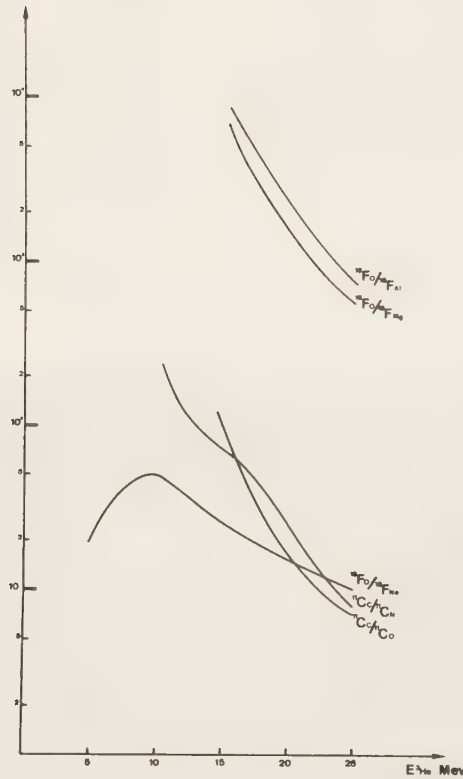


Fig. 86

Variation en fonction de l'énergie des ^3He , de l'importance relative des interférences

- du sodium $\left[^{18}\text{F}_\text{O}/^{18}\text{F}_\text{Na}\right]$, du magnésium $\left[^{18}\text{F}_\text{O}/^{18}\text{F}_\text{Mg}\right]$
et de l'aluminium $\left[^{18}\text{F}_\text{O}/^{18}\text{F}_\text{Al}\right]$, dans les dosages de l'oxygène.
- de l'azote $\left[^{11}\text{C}_\text{C}/^{11}\text{C}_\text{N}\right]$ et de l'oxygène $\left[^{11}\text{C}_\text{C}/^{11}\text{C}_\text{O}\right]$ dans les dosages de carbone d'après les courbes de rendement publiées par N. N. KRASNOV et al. [61]

Fig. 87

Variation en fonction de l'énergie des particules α , de l'importance relative des interférences

- du béryllium dans les dosages de carbone et réciproquement

$$\left[{}^{11}\text{C}_\text{C} / {}^{11}\text{C}_\text{Be} \right]$$

- du bore dans les dosages de l'azote et réciproquement

$$\left[{}^{13}\text{N}_\text{N} / {}^{13}\text{N}_\text{B} \right]$$

- du fluor dans les dosages de l'oxygène et réciproquement

$$\left[{}^{18}\text{F}_\text{O} / {}^{18}\text{F}_\text{F} \right]$$

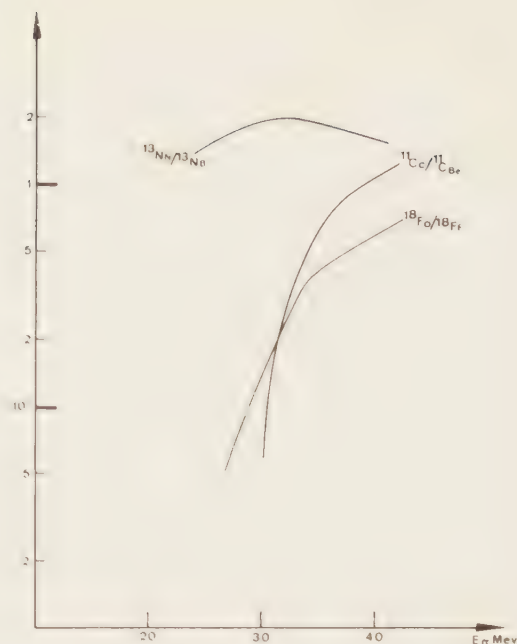


Fig. 88

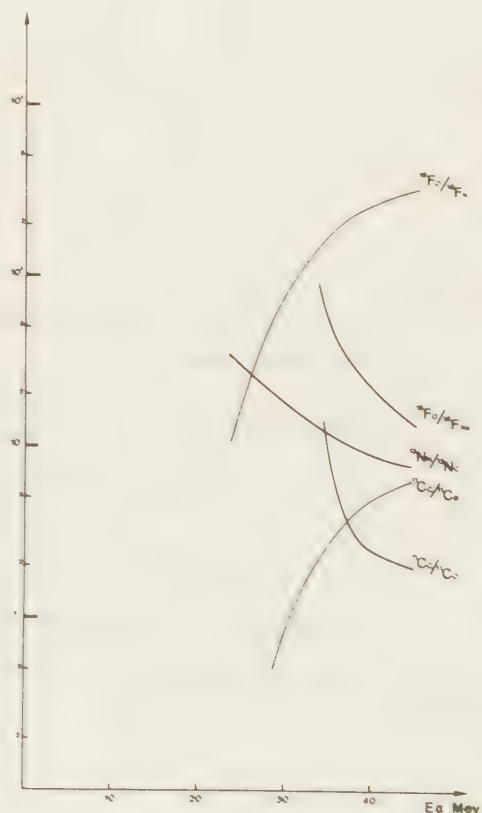
Variation en fonction de l'énergie des particules α de l'importance relative des interférences

- de l'azote $\left[{}^{18}\text{F}_\text{O} / {}^{18}\text{F}_\text{N} \right]$ et du sodium $\left[{}^{18}\text{F}_\text{O} / {}^{18}\text{F}_\text{Na} \right]$ dans les dosages d'oxygène

- du bore $\left[{}^{11}\text{C}_\text{C} / {}^{11}\text{C}_\text{B} \right]$ et de l'oxygène $\left[{}^{11}\text{C}_\text{C} / {}^{11}\text{C}_\text{O} \right]$ dans les dosages de carbone.

- du carbone dans les dosages de l'azote $\left[{}^{13}\text{N}_\text{N} / {}^{13}\text{N}_\text{C} \right]$

d'après les courbes de rendement publiées par N. N. KRASNOV et al [61] et les résultats de J. L. DEBRUN et al [38] [66] pour la courbe $\left[{}^{11}\text{C}_\text{C} / {}^{11}\text{C}_\text{O} \right]$.



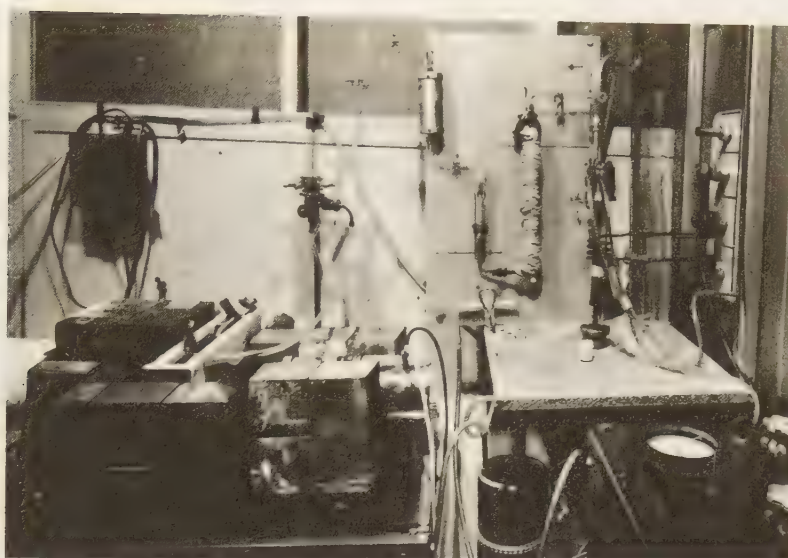
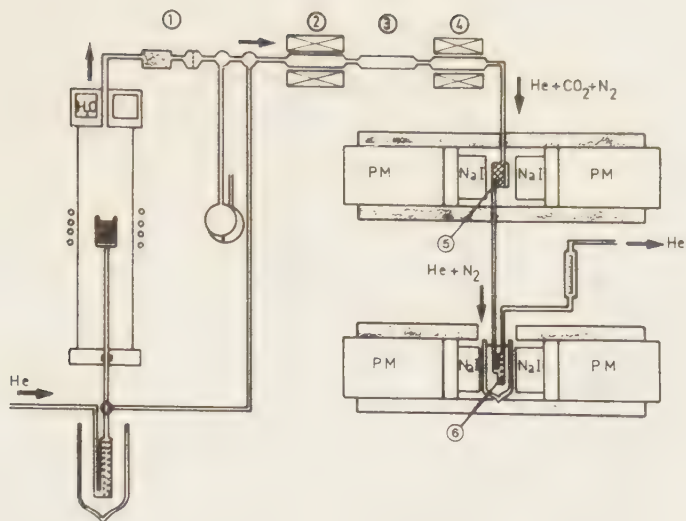


Fig. 89

Séparation simultanée du carbone 11 et de l'azote 13 par fusion oxydante

En haut :

Schéma de principe

- 1 laine de verre et filtre
- 2 four à Cu et Cu O
- 3 réactif de SCHUTZE
- 4 four à laine d'argent
- 5 ascarite
- 6 tamis dans l'azote liquide

En bas :

Photographie du dispositif. En suivant le circuit à partir de la self de chauffage, on rencontre les diverses parties du schéma ci-dessus. Dans ce montage expérimental, l'ascarite (au milieu et en haut du cliché, immédiatement après le petit four) n'est pas placé entre les deux compteurs. En revanche on aperçoit les deux compteurs de part et d'autre de la boîte normalement remplie d'azote liquide, contenant le piège à tamis moléculaire.

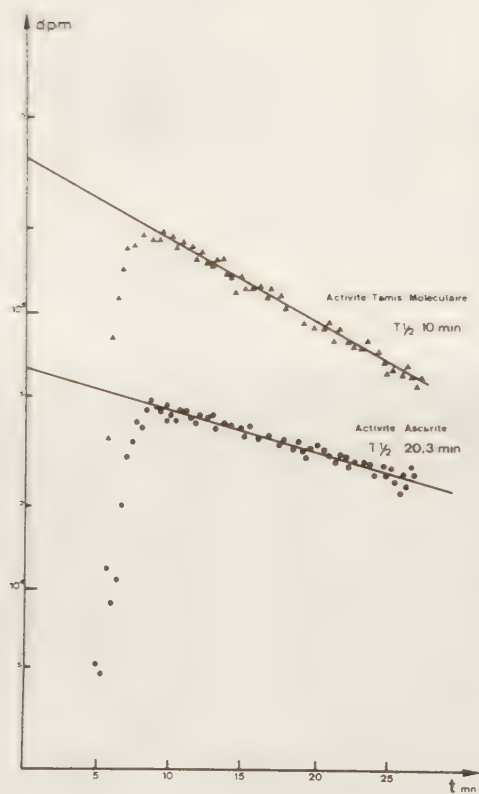


Fig. 90

Exemple de courbes de décroissance des activités de l'ascarite et du tamis moléculaire, relatives à un dosage simultané du carbone et de l'azote dans le tantale, par activation avec les photons. L'origine de l'axe des temps correspond à la fin de l'irradiation

$t = 20$ minutes $I_m = 50 \mu A$

Teneurs déterminées

C $1,3 \mu g/g$

N₂ $6,7$ "

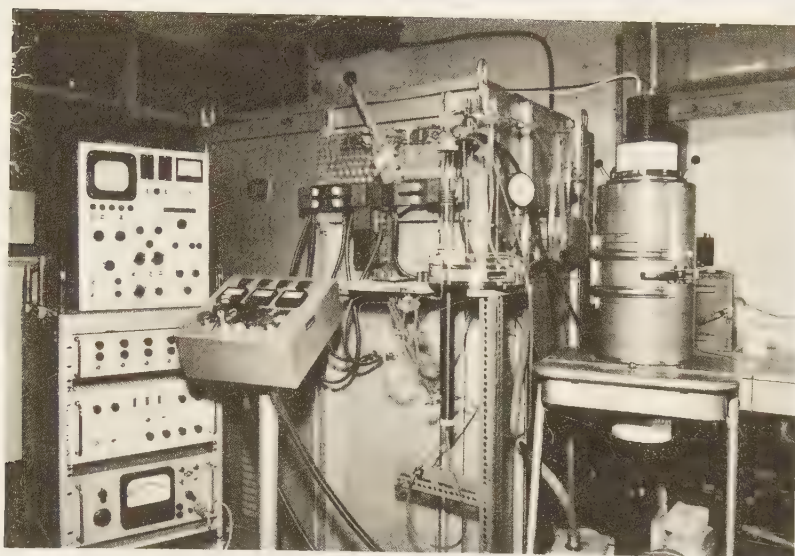
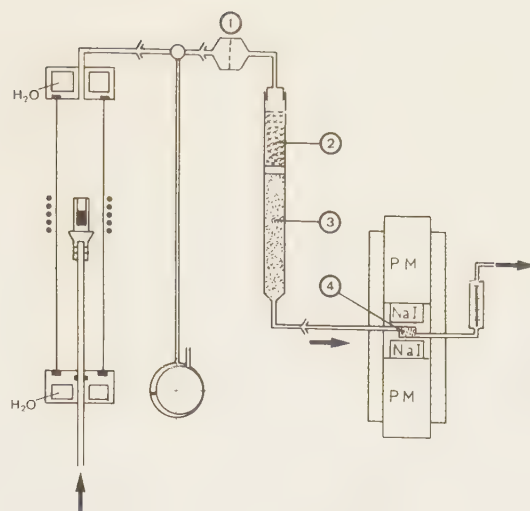


Fig. 91

Séparation de l'oxygène 15 par fusion réductrice

En haut :

Schéma de principe

- 1 laine de verre et filtre en verre fritté
- 2 réactif de Schütze
- 3 hopcalite
- 4 boîte de Ø 50 mm contenant l'ascarite

En bas :

Photographie de l'installation complète.

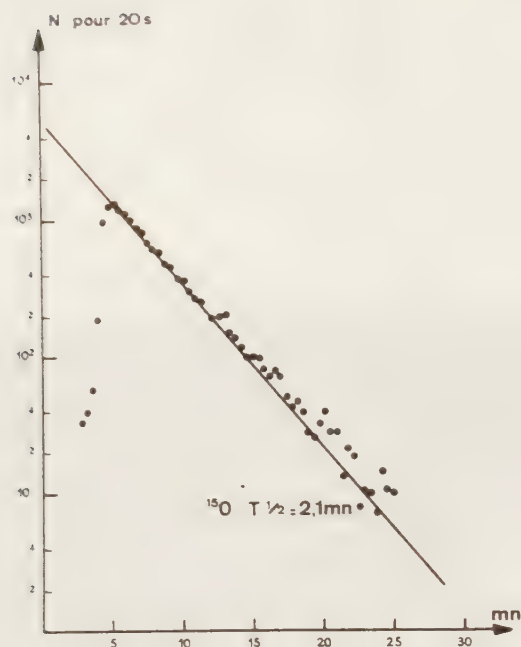


Fig. 92

Exemple de courbe de décroissance de l'activité du piège à ascarite, relative à un dosage d'oxygène par activation avec les photons et séparation de l'oxygène ^{15}O par fusion réductrice.

L'origine de l'axe des temps correspond à la fin de l'irradiation.

Fig. 93

Exemple de courbe de décroissance relative à un dosage non destructif de l'oxygène dans le sodium. La teneur en potassium de l'échantillon est inférieure à $10 \mu\text{g/g}$.

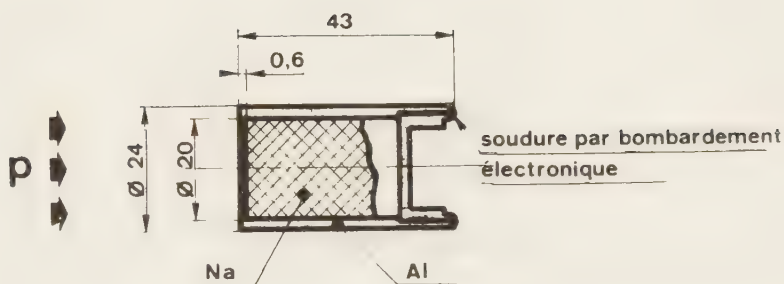
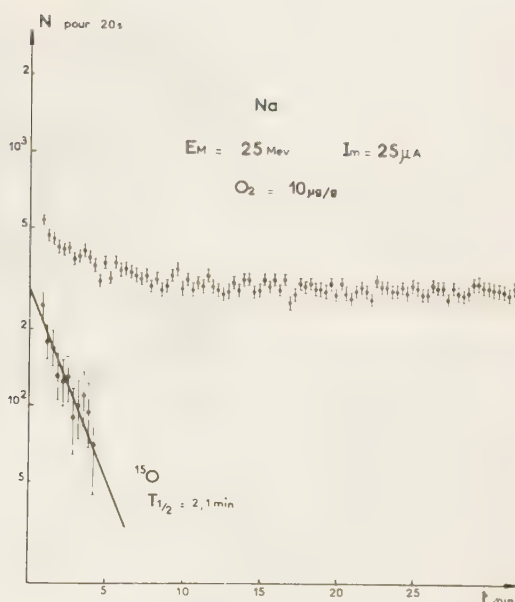


Fig. 94

Dessin d'une capsule d'irradiation utilisée pour le dosage de l'oxygène dans le sodium par activation avec les protons

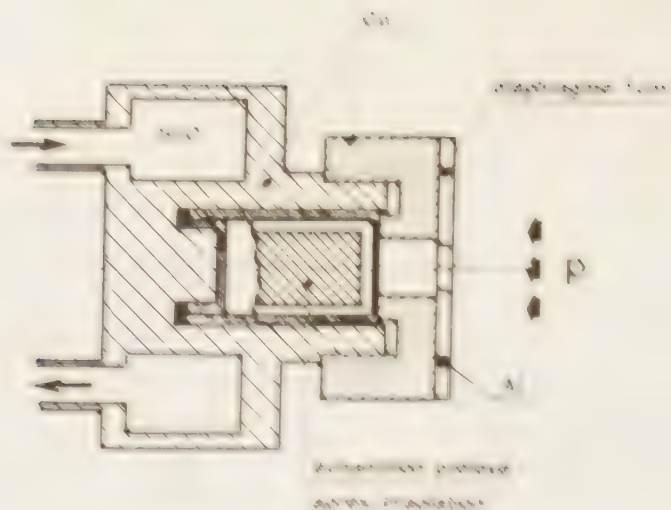


Fig. 48

Représentation schématisée du support d'irradiation de la partie hachurée du sodium contenu dans la capsule correspondant à l'activation de la sonde après irradiation.

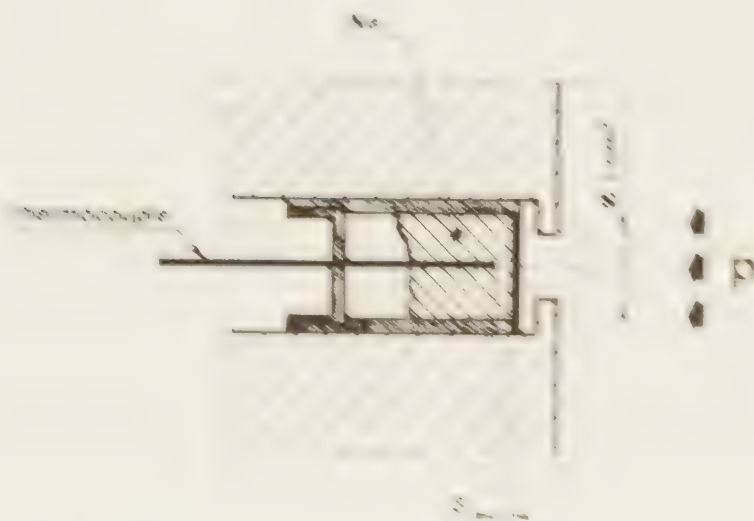


Fig. 49

Diagramme illustrant la création du thermocouple dans le sodium lors des mesures de température.

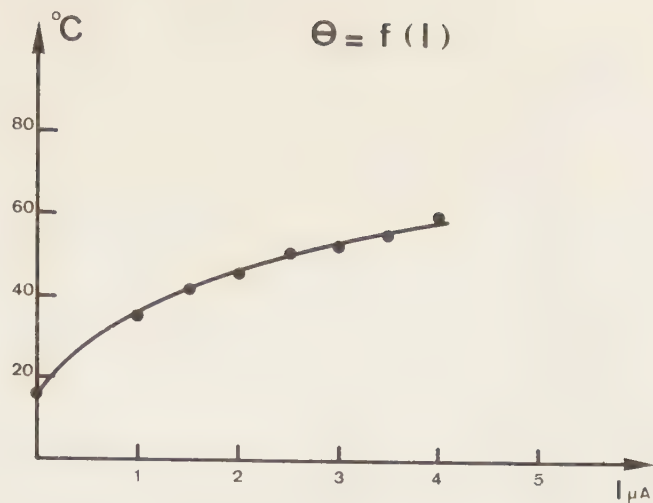


Fig. 97

Variation de la température dans le sodium
en fonction de l'intensité du faisceau de protons.

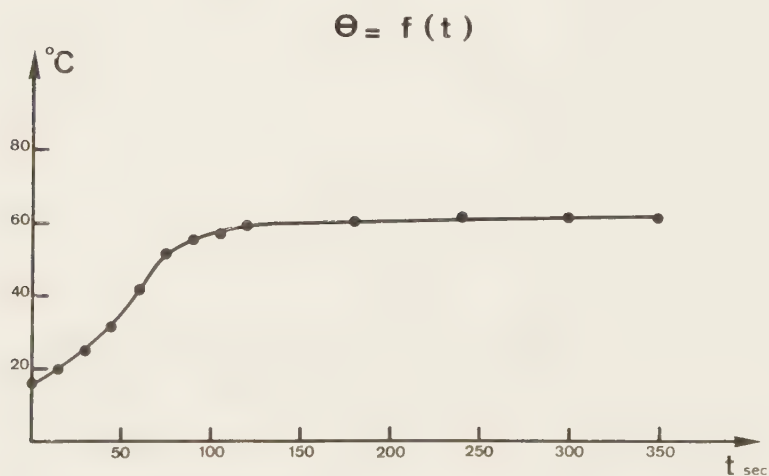


Fig. 98

Variation de la température dans le sodium
en fonction du temps. L'intensité du faisceau
était de $4 \mu\text{A}$.

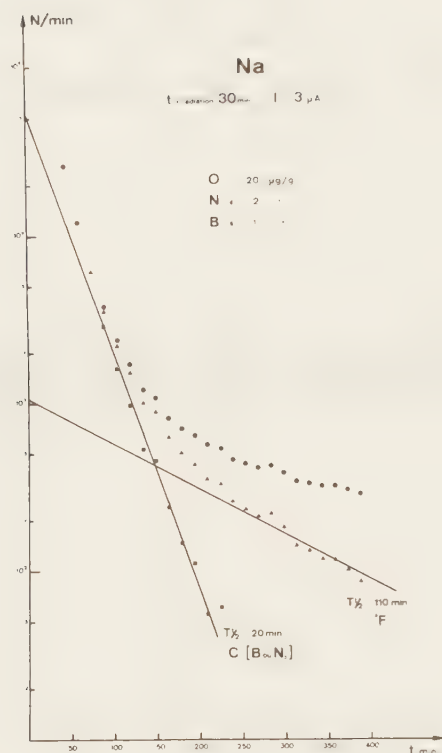


Fig. 99

Exemple de courbe de décroissance relative à un dosage non destructif de l'oxygène dans le sodium par activation avec les protons.

Fig. 100

Répartition des atomes de ^{18}F provenant de l'activation de l'oxygène par des particules α de 42 MeV dans les feuilles successives d'aluminium de l'empilement irradié dans l'air.

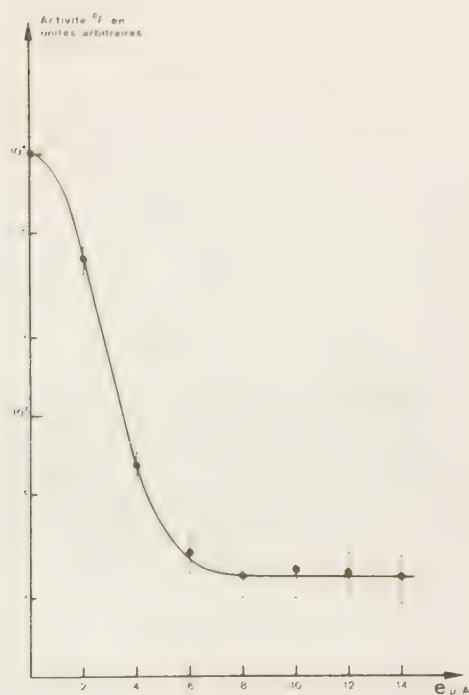
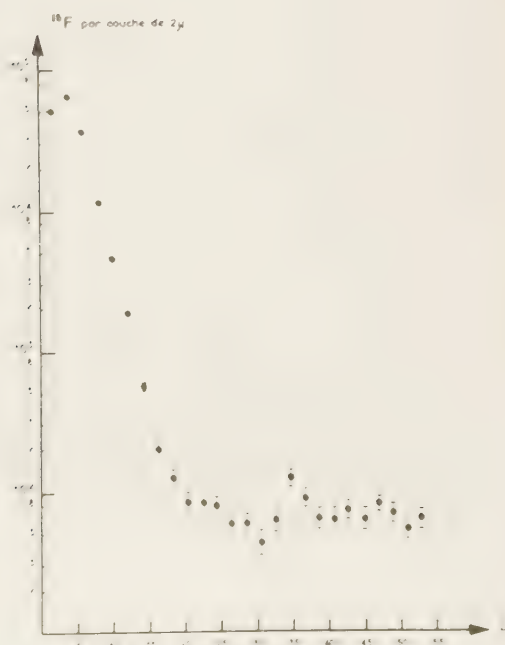


Fig. 101

Répartition du fluor 18 provenant de l'activation de l'oxygène par des particules α de 42 MeV dans un échantillon de silicium irradié dans l'air, déterminée par abrasion mécanique et comptage des couches successives.

t irrad. = 30 min. $I = 3 \mu\text{A}$



DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Vu et approuvé

Orsay, le 1 juin 1970

Le Doyen de la Faculté des Sciences
d'Orsay

G. POITOU

